

THÈSES

présentées

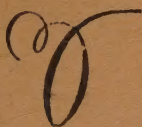
à la Faculté des Sciences de l'Université de Nantes

pour obtenir

le GRADE de DOCTEUR - INGENIEUR

par

Jean LAROUSSE



1^{ère} THESE : Cryodessication en phase gazeuse

2^{ème} THESE : *Propositions données par la Faculté*

Soutenues le 26 octobre 1964 devant la Commission d'Examen

M. DUNOYER Président

M. SALMON-LEGAGNEUR

M. MINN

} Examinateurs

THÈSES

présentées

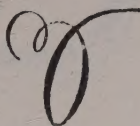
à la Faculté des Sciences de l'Université de Nantes

pour obtenir

le GRADE de DOCTEUR - INGENIEUR

par

Jean LAROUSSE



1^{ère} THESE : Cryodessication en phase gazeuse

2^{ème} THESE : *Propositions données par la Faculté*

Soutenues le 26 octobre 1964 devant la Commission d'Examen

M. DUNOYER Président

M. SALMON-LEGAGNEUR

M. MINN

} Examinateurs

THESES



FACULTE des SCIENCES

Doyen

M. BRILLOUET

Assesseur

M. PIRONNEAU

Professeurs Titulaires

MM. BRILLOUET

Mathématiques

PAUC

"

PETRESCU

"

RAFFIN

"

PIRONNEAU

Mécanique

RAVILLY

"

BOULLOUD

Physique

COLLET

"

DUNOYER

Chimie

GRAFF

"

VAUGIEN

Biologie Animale

GARRIGUES

Biologie Végétale

Mlle DEBRAUX

"

M. GOURINARD

Géologie

Professeurs et Maîtres de Conférences

MM. MOLINARO

Mathématiques

VAILLANT

"

VIVIER

"

BALQUET

Mécanique

AVIGNON

Physique

GOUREAUX

"

LASKAR

"

LERMUSIAUX

"

MEZENECV

"

MINN

"

MOUTON

"

JOLIVET

Chimie

GOBIN

"

QUINIOU

"

ROUXEL

"

WOJTKOWIAK

"

PIERI

Biologie Animale

SELLIER

"

DUPONT

Biologie Végétale

OTTMANN

Géologie

FORESTIER

"

Secrétaire

M. PAILLET

Ce travail a pu être effectué grâce au concours du Centre National de la Recherche Scientifique dans les locaux aimablement mis à notre disposition par Monsieur le Directeur de l'Ecole Nationale Supérieure de Mécanique de Nantes.

Nous remercions Monsieur le Professeur DUNOYER pour les conseils, les avis et les encouragements qu'il nous a prodigués, Monsieur le Professeur SOUCHAY pour l'intérêt qu'il a pris à cette étude et Messieurs les Professeurs qui ont bien voulu composer le jury de cette thèse.

A Monsieur le Directeur du Centre Régional de la Transfusion Sanguine de Nantes qui nous a si gracieusement hébergé durant de longues mesures, aux ingénieurs de la Société Brissonneau-York qui nous ont permis de présenter un projet concret de réalisation en conclusion de ce travail, à tous ceux que nous avons côtoyé et qui nous ont aidé par leurs conseils et leur sympathique compréhension, nous exprimons notre profonde gratitude.

TABLE DES MATIERES

	Pages
- AVANT-PROPOS	1
- Chapitre I GENERALITES	3
Rappels sur le processus de l'évaporation	
Facteurs essentiels	3
Aperçu des recherches antérieures	11
- Chapitre II INFLUENCE DE L'ANGLE D'INCIDENCE	26
Notions théoriques	27
Etude expérimentale	28
- Chapitre III INFLUENCES DE LA TEMPERATURE ET DE LA VITESSE DU COURANT GAZEUX	37
Aperçu théorique de l'influence de la vitesse	37
Etude expérimentale	47
- influence de la vitesse	48
- influence de la température	53
- conclusions	56
- Notes	56
- Chapitre IV ETUDE DE LA SUBLIMATION EN FONCTION DE LA LONGUEUR DE SURFACE LECHÉE	61
Bandes perpendiculaires à la direction du courant d'air	62
Bandes parallèles à la direction du courant d'air	66
Synthèse	68
Etude directe	69

	Pages
- Chapitre V ETUDE DE LA METHODE SOUS VIDE	73
Machine semi-industrielle	73
Machine de laboratoire	79
Notes	82
- Chapitre VI ETUDE GRAPHIQUE DE LA SUBLIMATION APRES FRACTIONNEMENT	85
Marche suivie	85
Détermination graphique de la courbe $V=F(D)$	86
- principe	86
- application	87
- tracé des courbes C : $f = f (D)$	88
- tracé des courbes E : $f = \eta (D)$	91
- tracé de la courbe $V = F (D)$	93
Détermination de la courbe $P = f (D)$	97
Comparaison avec la lyophilisation	100
- Chapitre VII CRYODESSICATION DE MOUSSE CONGELEE , DANS UN COURANT GAZEUX	105
Description de l'appareil	106
Courbe expérimentale	108
Conclusions	110
- Chapitre VIII OUVERTURES SUR L'INDUSTRIE	113
Appareil utilisant de l'azote liquide	114
Projet d'appareil utilisant la dessiccation par adsorbants	117
Projet d'appareil utilisant la dessiccation frigorifique	119
- CONCLUSION	129
- BIBLIOGRAPHIE	

AVANT - PROPOS

Depuis déjà plusieurs années, s'est posé le problème de la dessiccation industrielle de nombreuses substances qui ne peuvent être conservées que sous forme anhydre ou qui sont avantageusement transportées privées de la majorité de l'eau qu'elles contenaient.

Si la méthode d'évaporation par chauffage reste le moyen le plus couramment utilisé, il existe des substances assez fragiles qui ne subissent pas sans dommage de telles élévations de température.

Pour la récolte du sel dans les marais salants, on utilise l'action naturelle et desséchante du vent. Cette méthode ne peut cependant pas être étendue à la dessiccation des substances fragiles. La concentration saline élevée (1) atteinte par la solution durant la dernière phase du processus entraîne une dénaturation du produit, même sans élévation de la température.

La lyophilisation utilise l'action du vide. Dans ce dernier procédé cependant, lorsque l'on a affaire à certaines solutions, il y a une formation considérable de mousse souvent extrêmement gênante et pratiquement inévitable. D'autre part, comme dans le cas précédent, le fait d'opérer en phase liquide, provoque des concentrations locales élevées dénaturant la substance.

Le seul moyen actuellement connu pour, d'une part, empêcher les dégradations de corps extrêmement fragiles que le seul fait d'être en solution détruit ou détériore en partie et, d'autre part, éviter cette formation intempestive de mousse, est de pratiquer la lyophilisation sur la solution congelée, donc à l'état solide, et à assez basse température

pour la conserver dans cet état.

La conservation à l'état sec à la température ambiante de produits aussi précieux et fragiles que le plasma sanguin les vitamines, les semences pour insémination artificielle , les antibiotiques, les albumines, les sucs embryonnaires etc. a entraîné de nombreuses études sur la lyophilisation (2) .

Un tel procédé est cependant très coûteux et les installations devant provoquer et conserver un vide assez poussé sont onéreuses.

Il peut paraître utile d'envisager une autre méthode telle que la sublimation de ces solides dans un courant gazeux. Une comparaison de la vitesse, du prix de revient et de l'efficacité des deux méthodes pourrait avoir un intérêt non négligeable.

Nous essaierons dans ce qui suit d'étudier, tout au moins en partie, ce vaste problème de la dessiccation dans un courant gazeux sec et froid.

Chapitre I

GENERALITES

Tout solide ou tout liquide au repos émet une vapeur.

On dit que la vapeur sature l'espace situé au voisinage du corps qui s'évapore, lorsque l'émission semble atteindre une limite. Cette saturation se manifeste à notre échelle par un arrêt de la perte de poids de la phase solide ou liquide. A l'échelle moléculaire, cet arrêt, loin d'être une disparition de l'agitation, est provoqué au contraire, par un équilibre.

Au sein du solide ou du liquide, les molécules sont en mouvement. Elles se choquent et sont porteuses d'une certaine énergie. Tant que ces molécules possèdent une faible énergie, elles restent à l'intérieur du corps. Si, à la suite de chocs, l'une d'elles acquiert suffisamment d'énergie, elle peut alors sortir du milieu solide ou liquide et se trouver, hors du corps, dans la phase vapeur (3). Une augmentation de température peut donner aux molécules un regain d'énergie qui fait croître le nombre de celles qui passent en phase gazeuse.

A une température donnée, on assiste donc au départ, par seconde, d'un certain nombre de molécules. Celles-ci, dans la phase vapeur, continuent à se heurter ; les chocs y sont d'autant plus nombreux que l'espace est habité. A chaque choc s'opère une brusque modification de la direction et on assiste au retour sur la surface de séparation des phases, de certaines molécules précédemment échappées.

Beaucoup se fixent de nouveau au solide, d'autres rebondissent. Ces dernières peuvent être considérées comme fixées puis à nouveau échappées.

On assiste donc à ce double phénomène :

- d'une part, l'émission par le solide, indépendamment du milieu extérieur, d'un nombre de molécules pratiquement constant en un temps donné quand les circonstances ne varient pas.
- d'autre part, au retour de certaines de ces molécules , retour d'autant plus important que l'espace environnant en contient une plus grande quantité.

Les nombres de départs et de retours sont parfaitement indépendants l'un de l'autre .

Si le premier est le plus fort on assiste à une évaporation ou à une sublimation.

Si le second l'emporte on a une condensation.

S'ils sont égaux, le liquide ou le solide est en équilibre avec sa vapeur.

De ce petit et très court résumé on peut, de suite, tirer les conclusions pratiques qui inspirent les différentes techniques utilisées pour obtenir une forte évaporation :

- une augmentation de la température faisant croître l'énergie interne du corps, fournit à ses molécules une grande énergie et permet une forte libération de celles-ci . On dit que la tension de vapeur augmente avec la température. Cette propriété est utilisée lorsque l'on chauffe pour évaporer un liquide. L'apport de calories nécessaire pour donner aux molécules l'énergie libératrice constitue la chaleur latente d'évaporation. C'est actuellement la méthode la plus couramment utilisée dans l'industrie. Son défaut essentiel est de ne pas être applicable aux corps ne pouvant supporter sans dénaturation une élévation notable de température.

- si le facteur accélérant l'évaporation ne peut venir du corps lui-même il faut alors le chercher dans la vapeur et essayer d'éviter les retours . Deux procédés se présentent à l'esprit :

- d'abord éviter les chocs . Ainsi, les molécules quittant la surface et ne rencontrant rien pour changer leur direction s'en iront, sur leur lancée, sans pouvoir revenir à leur point de départ. On parvient à ce résultat en faisant le vide au-dessus de la surface à évaporer. L'enceinte n'étant toutefois pas infinie, si cet espace n'est pas occupé par l'air, il le sera tôt ou tard par la vapeur émise.

Si l'on continue à faire le vide, on introduit dans la pompe des quantités appréciables de vapeur (de l'eau dans la plupart des cas) et cela n'en favorise pas le fonctionnement. Il faut donc interposer un système captant les molécules gazeuses avant leur entrée dans la pompe. On réalise généralement cette opération en intercalant un condenseur : serpentín très froid où se condense la vapeur. L'opération globale se réduit alors schématiquement à un transfert en ligne droite du corps à évaporer jusqu'au condenseur. Pour empêcher les molécules déposées sur le condenseur de s'échapper à nouveau, il faut que ce dernier soit très froid. Ces conditions théoriques ne peuvent jamais être parfaitement réalisées et l'on doit souvent accepter un compromis (4).

- Si l'on ne peut éviter les chocs on peut alors essayer de ne maintenir le volume de vapeur formée, qu'un très court instant au-dessus de la surface à évaporer. On peut tenter de balayer cette vapeur sitôt formée, en ne lui laissant que très peu de temps pour revenir à la surface. Durant ce court instant, bien sûr, de nombreux retours pourront s'effectuer , mais plus le balayage est rapide moins ceux-ci sont importants. Un tel balayage peut être obtenu en léchant la surface par un courant gazeux.

Cette technique présente sur la précédente un certain désavantage. Si les molécules échappées sont expulsées et ont donc moins de chances de regagner leur point de départ, il n'en reste pas moins que la présence des multiples molécules composant le courant gazeux constitue un grand nombre d'obstacles contre lesquels se heurtent les fugitives. Ces obstacles diminuant le libre parcours moyen créent une sorte de bouchon

au-dessus de la surface. Ils risquent de renvoyer sur celle-ci des molécules qui n'y reviendraient pas si le vide régnait au-dessus du solide et diminuent d'autant le rendement.

C'est cette dernière méthode, surement moins parfaite que la lyophilisation mais combien plus économique semble-t-il que nous avons cependant voulu étudier.

Très divers sont les chercheurs qui se sont penchés sur cette dernière façon d'opérer. Nous avons voulu le faire beaucoup plus dans une optique pratique que d'un point de vue théorique et nous nous sommes essentiellement attachés à considérer le côté expérimental et l'aspect économique du problème.

Lors de la sublimation d'un corps solide sous l'action d'un courant gazeux, se produisent, dans la zone où les deux phases sont en contact des échanges très complexes.

A cause de sa viscosité, l'air est freiné par le frottement contre la surface. On peut observer un gradient de vitesses depuis le contact de la paroi jusqu'à l'instant où, suffisamment éloigné de celle-ci, l'air retrouve son écoulement normal. Ici s'introduit la notion de couche-limite qui est précisément cette zone très mince où l'air tend à reprendre son régime normal. Si l'explication de cette zone est aisée dans le cas des vitesses, il faut savoir que la notion de couche-limite joue un rôle de la plus haute importance dans tous les phénomènes d'échanges.

Depuis quelque temps, comme on le verra plus loin, la correspondance des transferts de matière (évaporation), de chaleur, de quantité de mouvement etc. fait l'objet de sérieuses études mathématiques. La multiplicité des équations théoriques plus complexes les unes que les autres, nous oblige cependant de constater que le phénomène est d'une très grande envergure et fait intervenir de très nombreux facteurs. Nous pouvons citer parmi ceux-ci : la vitesse du courant gazeux,

la pression, la structure du corps à évaporer, la nature de l'écoulement, les forces de frottement, les coefficients de diffusion, la tension de vapeur du corps à évaporer, les coefficients de transfert de chaleur, les paramètres géométriques, l'influence des corps dissous, les libre-parcours moyens, l'angle d'incidence du courant gazeux, la température ... cette liste étant très loin d'être limitative. Il est donc impossible de faire entrer dans un travail théorique la totalité des données. Cela se traduit toujours par des résultats différant parfois notablement de ceux fournis par l'expérience.

Les investigations menées à partir de ces multiples facteurs pour en tirer une équation utilisable se heurtent toujours au même dilemme :

- ou l'on ne tient compte que des données les plus immédiates et les plus facilement mesurables et l'on obtient une équation du genre de celle de Dalton et de ses successeurs. On a alors une expression commode mais obligatoirement incomplète et qui doit, pour être appliquée avec de plus en plus de justesse et de précision, être améliorée par de multiples études empiriques lui adjoignant des facteurs coorrectifs que seule l'expérience peut fixer .

- ou bien on veut tenir compte d'un nombre plus grand de données de départ, facteurs très importants mais difficilement accessibles aux mesures, et l'on obtient des expressions incroyablement compliquées et inapplicables. Ces expressions sont sûrement plus exactes que les précédentes du point de vue théorique, de la forme et de la beauté mathématiques, mais elles sont immédiatement et pratiquement inutilisables.

Les deux conceptions existent et se justifient. Dans les pages qui suivent nous avons choisi la première . Nous avons tenu, cependant, à montrer les bases de des expressions théoriques et quelques-uns de leurs résultats, nous les trouverons à la fin de ce chapitre.

Nous avons cité plus haut quelques facteurs ayant une influence sur l'évaporation. Il est possible d'en préciser un peu le mode d'action pour certains :

- Diffusion

C'est l'un des phénomènes les plus importants dans l'étude de l'évaporation sous l'action d'un courant gazeux.

La diffusion, le transport, l'éloignement de la vapeur émise par la surface, peut se faire de deux manières :

- chaque molécule, arrivant dans une atmosphère calme à l'échelle macroscopique, se trouve, à l'échelle microscopique, entourée de molécules en mouvement continu. Les rencontres, les chocs, dévient sa route et le calcul des probabilités montre qu'elle a les plus grandes chances de s'écarter de plus en plus de son point de départ. La vapeur émise occupe donc un espace toujours plus grand.

Cette diffusion moléculaire est essentiellement tributaire de la température. Un apport de chaleur fait croître l'énergie interne de chaque molécule et donc, la violence des chocs. Les molécules sont animées de très grandes vitesses mais, le nombre de ces particules étant gigantesque, leurs chocs sont extrêmement fréquents si bien que leur libre parcours moyen, distance parcourue entre deux chocs, se trouve très réduit. Cette diffusion moléculaire, qui existe à l'échelle microscopique, est celle qui correspond à l'écoulement laminaire. Dans le coefficient de diffusion global D il faut donc faire entrer le coefficient de diffusion moléculaire m .

- comme il existe écoulement laminaire et écoulement turbulent, il y a diffusion moléculaire et diffusion molaire. Cette dernière se produit à l'échelle macroscopique : un groupe d'une myriade de molécules se déplace et s'éloigne de la surface d'évaporation. Le mouvement de ce volume de vapeur est beaucoup plus lent que celui des molécules qui le composent mais il se déplace en ligne droite sur une beaucoup plus grande distance. Dans le coefficient de diffusion total D il faut aussi faire intervenir le coefficient de diffusion molaire M .

Puisque le phénomène de diffusion est régi par la loi de Fick (5) :

$$N = D_y \frac{\partial n}{\partial y}$$

où N est le taux de diffusion dans la direction de y d'une quantité de concentration n , le coefficient D_y de diffusion global dans le sens des y se trouve être la somme des deux coefficients partiels moléculaire m et molaire M .

Dans l'écoulement laminaire il y a toujours une très petite influence de M mais m l'emporte. Dans l'écoulement turbulent M est considérablement plus grand que m.

- Echanges de chaleur

La température étant directement liée à l'agitation des molécules, l'énergie cinétique qu'elles possèdent l'est à la chaleur qu'elles ont reçue. Nous avons vu que pour faciliter l'évaporation il fallait chauffer. Cette énergie se dépense quand les molécules l'utilisent pour vaincre les interactions existant à l'état condensé.

Si l'apport de chaleur cesse, l'évaporation se ralentit et les quelques molécules continuant à s'échapper doivent prendre l'énergie nécessaire à leur fuite dans le milieu lui-même. Un solide ou un liquide isolé se refroidit lorsqu'il continue à s'évaporer.

Comme nous le verrons plus loin, ces phénomènes d'échanges de chaleur, ont été utilisés comme moyen totalement indépendant pour mesurer les quantités évaporées à partir de grandes comme de petites masses d'eau.

- Influence des corps dissous

Les corps dissous dans le produit à évaporer en abaissent la tension de vapeur. On pourrait voir là un facteur très important. Cet effet n'a cependant pas de conséquences très marquées; il est en effet contrebalancé par un phénomène contraire. Si la tension de vapeur saturante est diminuée, l'évaporation est moindre, donc la baisse de température du

milieu est plus faible et, de ce fait, l'évaporation est moins freinée qu'en l'absence de corps dissous. Les deux effets tendent donc à se neutraliser. Leurs influences opposées, plus forte tantôt dans un sens, tantôt dans l'autre, devront être étudiées dans chaque cas précis, aucune règle générale ne présidant à la supériorité systématique de l'un des deux phénomènes.

Le problème de l'évaporation a été fort souvent étudié et présente une multitude d'aspects. Sa cinétique fait, depuis plus de 150 ans, l'objet de nombreuses théories tant en régime laminaire qu'en régime turbulent.

La plupart des études faites dans ces domaines sont aussi valables pour l'évaporation d'un liquide que pour celle d'un solide.

Pour étayer les constructions mathématiques ainsi échafaudées, beaucoup ont cherché, comme nous le ferons dans cette thèse, à montrer la relation qui existait entre la quantité évaporée et tel ou tel facteur et l'inévitable comparaison : évaporation dans le vide et évaporation dans l'air s'est imposée.

De nombreux traités techniques ont, enfin, tiré les conclusions pratiques de ce tandem théorie-expérimentation.

Nous retracerons, sans développer chaque point de détail, les différentes étapes qui, lors des deux derniers siècles, ont marqué très nettement le départ puis la progression de la connaissance théorique du processus de la cinétique de l'évaporation et de la sublimation.

Aperçu des recherches antérieures

On peut dire que l'étude systématique du phénomène de l'évaporation a commencé en 1802 lorsque Dalton exprima que l'évaporation d'une nappe d'eau était proportionnelle à la différence entre la pression de vapeur à la surface de l'eau e_s et la pression de vapeur d'eau dans l'atmosphère sus-jacente e_a (6) .

Cette équation : $E = Cste (e_s - e_a)$ fut reprise par de nombreux chercheurs qui essayèrent de la perfectionner et, surtout, de déterminer avec précision la constante.

A partir de cette hypothèse de travail, Fitzgerald (7) de 1876 à 1887 , Carpenter (8) en 1887 , Stelling (9) en Russie de 1875 à 1882, Freeman et Meyer (10) tentèrent de développer l'expression . Rohwer (11) en 1931 aboutit à une équation qui, adaptée à nos unités habituelles, exprime en centimètres la baisse de niveau d'une surface à évaporer en fonction d'une part, comme Dalton le préconisait, de la différence entre la pression de vapeur saturante e_s et la pression de vapeur ambiante e_a et d'autre part en fonction de la vitesse du vent exprimée en Km/h.

$$E_{cm} = (0,44 + 0,0735 V_{Km/h}) (e_s - e_a)_{cm \text{ de mercure}}$$

Entre autres, Rowher publia les importants travaux exécutés au Colorado A and M College depuis une cinquantaine d'années et parvint à une expression tenant compte de l'influence de la pression barométrique et donc de l'altitude . Cette expression est la même que la précédente mais il en faut multiplier le second membre par le facteur :

$$K . (1,465 - 0,0073 H)$$

où H est la pression atmosphérique du lieu à 0°C. exprimée en cm de mercure et K une constante. Cette expression, vérifiée en divers points des USA, semble avoir un domaine d'application général.

Des expériences poursuivies dans cette voie, partant de la loi de Dalton, ont conduit les chercheurs à immerger à fleur d'eau ou à les enterrer jusqu'au ras du sol, de grands bacs remplis d'eau pour en déterminer l'évaporation. Lorsque ces bacs étaient immergés ou enterrés leur évaporation était comparable à celle obtenue avec de grandes étendues. Quand les bacs étaient surélevés et hors de l'eau ou du sol, les résultats étaient sensiblement différents. Il faut voir là, entre autres, l'influence du transport des calories du fond vers la surface qui favorise l'évaporation et qui ne peut plus se produire si le bac est isolé du reste du milieu.

Durant la première guerre mondiale, les théoriciens, abandonnant la loi de Dalton comme point de départ, préférèrent se pencher sur les phénomènes d'échange de chaleur et, après avoir constaté qu'un corps en s'évaporant, se refroidit, cherchèrent à dresser un bilan d'énergie et à exprimer en une équation, toutes les quantités de chaleur entrant dans le déroulement du processus de l'évaporation.

Schmid* (12) en 1915, Angström (13) Cummings et Richardson (14) de 1927 à 1940 utilisèrent, pour un bac ou un réservoir, cette théorie du bilan d'énergie thermique et établirent une équation du type suivant :

$$Q_a = Q_b + Q_c - Q_d - Q_e - Q_f$$

où Q_a est l'augmentation d'énergie emmagasinée dans le réservoir d'eau, Q_b l'énergie reçue par le soleil, Q_c la quantité d'énergie introduite d'une autre façon dans l'eau, Q_d la quantité d'énergie solaire réfléchie, Q_e l'énergie perdue sous forme de chaleur latente d'évaporation, Q_f l'énergie perdue par rayonnement, par contact avec l'air etc.

Pour vérifier une telle équation par l'expérience on conçoit qu'il ait été nécessaire d'utiliser des bacs soigneusement calorifugés où toutes ces quantités d'énergie pouvaient être minutieusement mesurées.

Les bacs proposés par Cummings pour ce genre de vérification étaient mieux isolés lorsqu'ils étaient enfouis ou immergés. Les réservoirs aériens étant soumis à l'action du vent qui provoquait de nombreuses pertes de chaleur non mesurables, les résultats étaient, encore ici, beaucoup plus concordants entre la nature et les bacs enfouis qu'entre celle-ci et les bacs surélevés.

En 1939 C.W. Thornthwaite et B. Holzman (15) publiaient les résultats de leurs recherches sur l'évaporation à partir de surfaces terrestres et de plans d'eau. Utilisant la théorie du transfert de masse et la mécanique des fluides, ils avaient établi une équation exacte du point de vue mathématique et théorique mais pratiquement inapplicable en raison de la difficulté de l'estimation de certaines quantités physiques qui y entraient.

Leur travail a cependant considérablement influencé les développements actuels de l'étude de l'évaporation.

Ce nouveau départ ayant pour bases le bilan d'énergie, le transfert de masses et la mécanique des fluides a demandé jusqu'en 1940 un travail considérable mais ne semble pas avoir donné tous les résultats qu'on en attendait.

Une nouvelle reprise des recherches a cependant eut lieu avec l'intervention de Prandtl (16) et sa notion de couche-limite, et de Reynolds (17) avec l'analogie : transfert de chaleur, transfert de quantité de mouvement. Ces deux théories, vieilles de plus de cinquante ans, ne furent cependant appliquées à l'évaporation que depuis fort peu de temps.

Les expressions qui en sont issues se caractérisent par des "nombres" appelés parfois "critérium", produits, souvent sans dimensions, de divers facteurs auxquels divers physiciens ont laissé leur nom.

A cette période se manifesta aussi une prise de conscience encore plus vive de l'importance de la diffusion.

Quand on étudie le phénomène de l'évaporation sous l'influence d'un gaz, trois quantités semblent initialement attirer l'attention et sont facteurs limitatifs :

- le nombre maximal de molécules qui peuvent quitter l'unité d'aire de cette surface ,
- la possibilité de diffusion dans l'atmosphère ambiante pour la vapeur formée au ras de la surface ,
- la quantité maximale de vapeur d'eau que peut contenir le courant gazeux balayant la surface .

Ces trois facteurs sont apparamment indépendants et un seul peut limiter l'ensemble de l'opération. Cette absence de relation, dans le cas du passage d'un courant d'air sur une surface plane, n'est, cependant, que fictive . En effet, si le nombre brut B de molécules pouvant quitter la surface , facilement calculable à partir de la théorie cinétique des gaz ($B = \frac{p}{(2 K T \pi m)^{1/2}}$ où K est la constante de Boltzman, m la masse d'une molécule, T la température absolue et p la pression) peut limiter l'évaporation, ce nombre doit être corrigé par celui des molécules qui reviennent à cette surface de départ.

Ce dernier nombre est fonction, nous l'avons vu, de la quantité de molécules encore au voisinage direct de la plaque à évaporer et cette quantité est directement liée à la diffusion ; une diffusion active élimine, en effet, rapidement ce bouchon de molécules. Si le nombre de retours est ainsi lié à la diffusion, le nombre net de molécules pouvant quitter définitivement la surface se trouve donc aussi fonction de la diffusion.

D'autre part, dans le cas général, dans celui de la nature et de l'action du vent sur les plans d'eau ou les surfaces terrestres humides, dans le cas d'un courant gazeux sur une surface plane, il est très rare, si le courant a quelque épaisseur et une vitesse non nulle, que l'air soit saturé quand il se retire.

Là encore, la diffusion est intervenue et seule, la zone au contact de la surface s'est humectée au maximum. Il s'est établi un gradient de concentration directement lié au phénomène de diffusion. On ne pourra envisager une saturation de l'air que lorsque tout celui-ci sera passé au contact du corps à évaporer. On verra à la fin de ce travail comment nous avons pu parvenir à ce résultat.

Mis à part ce dernier cas particulier, nous pouvons remarquer que, des trois facteurs limitatifs initiaux, un seul subsiste.

Cela explique pourquoi toutes les études théoriques de ces dix dernières années portent essentiellement sur la façon dont s'opère la diffusion.

Il existe deux sortes de diffusion, correspondant aux écoulements laminaire et turbulent. Nous verrons donc ce qui a été étudié sur chacune en envisageant pour chaque type, le cas de la convection libre et celui de la convection forcée.

Rappelons ce que l'on a l'habitude de désigner par ces termes : La convection libre s'effectue sous le seul effet de la pesanteur . La convection forcée est provoquée par l'action d'un vent transversal emportant, loin de la surface, les molécules qui se sont échappées. La concentration dans la zone voisine de la surface se trouvant donc réduite, l'action de ce vent provoqué a pour résultat de donner à moins de molécules la possibilité d'un retour, et donc, d'accélérer l'évaporation.

Convection laminaire

a) libre - La convection laminaire libre pourra être étudiée de façon théorique si l'on parvient à résoudre simultanément les équations de mouvement et celle de diffusion. Cela est imposé par l'interdépendance de la distribution des vitesses et des températures. Quand nous écrivons interdépendance il ne faut d'ailleurs pas comprendre correspondance, les gradients de vitesse, de température et de concentration n'étant pas les mêmes.

Nestorenko (18) qui a montré en 1954 le manque de similitude de ces champs stratifiés au-dessus de la surface en évaporation, a cependant introduit le nombre de Gushman traduisant l'action réciproque des deux transferts de chaleur et de concentration.

L'analyse dimensionnelle montre que le transfert de chaleur est, en outre, fonction des paramètres géométriques (dimension de la surface à évaporer, épaisseur du courant d'air) du nombre de Prandtl, du nombre de Grasshoff et de la différence de température existant entre la surface et l'air ambiant.

Poursuivant les travaux du lauréat du prix Staline, le Professeur Likoff, Nestorenko considéra que le transfert de masse est composé essentiellement de trois courants, à savoir, la diffusion moléculaire, une diffusion par concentration et une diffusion provoquée par les écarts de température. Lors de ses travaux effectués au laboratoire de chauffage et de ventilation de l'Institut de Constructions Civiles de Moscou, il opéra sur un réservoir d'évaporation cylindrique surmonté d'une cage limitée par de la gaze pour protéger les champs de température des courants d'air qui régnaient dans le laboratoire. Le fond du bac était chauffé, mais un système évitait de chauffer l'air ambiant. Il réussit ainsi à mesurer, de façon statifiée, les champs de température et de concentration en vapeur d'eau au-dessus du bac. Pour des raisons techniques, cependant, il ne put faire varier l'humidité de l'air ambiant.

L'auteur parvint ainsi à déterminer la proportion que représente, dans la diffusion totale, chacune des trois diffusions partielles précédemment citées et il réussit à préciser l'influence d'une variation de température sur cette répartition. Il montre que la diffusion par concentration entre pour la majeure part dans la diffusion totale. Le fait d'échauffer le réservoir d'évaporation augmente le courant moléculaire et parvient à le porter à 18% de la diffusion totale tandis que la diffusion causée par l'écart de

température n'augmente que de 1 % .

La diffusion est un transfert de masse . Cet auteur réussit le même travail et obtint la même répartition pour le transfert de chaleur : 85 % utilisés pour l'évaporation , 10 % s'échappant par rayonnement et seulement 5 % par convection lors de l'évaporation laminaire libre. Une élévation de la température de l'eau provoque une croissance du pourcentage réservé à l'évaporation, croissance liée, selon toute vraisemblance à celle de la diffusion moléculaire.

Pour le transfert de masse, Nestorenko aboutit à l'expression :

$$Nu = 0,665 (Gr \cdot Pr)^{0,248}$$

si le produit des nombres de Grasshoff et de Prandtl est compris entre 10^6 et 10^8 . Cette expression cadre parfaitement avec celle proposée par Goussieff.

Lorenz, par voie expérimentale, arrive à une équation voisine :

$$Nu = 0,513 Gr^{1/4}$$

où le nombre de Prandtl n'intervient cependant plus.

Si ces expressions ont été vérifiées expérimentalement et obtenues à partir de la pratique, des chercheurs ont élaboré des théories pour des cas rendus particuliers par la sélection des hypothèses. Ainsi Yih (19) partit de la notion de point-source. Pohlausen, prenant pour point de départ trois équations: l'une de diffusion, l'autre de mouvement et la troisième de continuité, parvint à en tirer deux équations différentielles qu'il résolut en partant des conditions aux limites, avec, encore, quelques données expérimentales.

b) forcée - Dans la convection laminaire forcée, l'air, balayant la surface à évaporer, est pulsé avec suffisamment de modération pour que l'écoulement reste laminaire. Le nombre de Reynolds indiquant, pour ainsi dire, le degré de turbulence , reste faible.

Prandtl introduisit en 1904 la notion de couche-limite,

très importante pour ce cas de convection. Il énonça que l'influence de la viscosité du fluide gazeux restait limitée à une couche relativement mince adhérant à la paroi. Cette notion peut être étendue et l'on peut considérer qu'il existe de même une couche de vapeur dans le cas de l'évaporation et que l'on y pourra déterminer la répartition de la vapeur comme on détermine celle des vitesses dans la couche-limite.

En partant des équations de Navier-Stokes, Albertson (20) a pu tirer le coefficient du transfert de vapeur. Ses résultats sont valables dans le cas où la couche de vapeur débute dès le bord d'attaque, de la surface à évaporer, par l'air.

Dans le cas contraire, celui où la couche-limite ne prend pas immédiatement naissance dès le bord d'attaque, il est possible d'obtenir des expressions du taux total d'évaporation en utilisant la méthode de relaxation et l'emploi de fonctions caractéristiques. Ces expressions furent partiellement vérifiées par les expériences d'Elias qui utilisa une zone d'approche de 10 cm.

En 1950, Maisel et Sherwood (21) ont aussi procédé à un grand nombre de mesures sur le cas de surfaces planes précédées d'une surface sèche de longueur x , mais l'évaporation s'y faisait le plus souvent de façon turbulente.

Enfin, Robin (22) en 1952 se livra à une étude théorique assez poussée pour l'évaporation forcée et mit en relief le parallélisme de la conduction thermique, de la diffusion d'une vapeur et du mouvement d'un fluide visqueux. Il exposa notamment l'analogie formelle des équations rendant compte de ces divers phénomènes.

La convection laminaire forcée fit encore l'objet des études de Nestorenko. Cet auteur dut faire intervenir un nouveau nombre, celui de Gushmann, traduisant l'influence des deux transferts de masse et de chaleur. Il obtint trois expressions dont le domaine d'application dépend du nombre de Reynolds

qui, à lui seul, ne tient pas compte de l'interdépendance des transferts :

$$Nu = 2 + 0,9 Re^{0,50} \cdot Pr^{0,33} \cdot Gu^{0,135}$$

pour Re compris entre 1 et 200

$$Nu = 0,87 Re^{0,54} \cdot Pr^{0,33} \cdot Gu^{0,135} \quad (Re \text{ entre } 200 \text{ et } 6\,000)$$

$$Nu = 0,347 Re^{0,65} \cdot Pr^{0,33} \cdot Gu^{0,135} \quad (Re \text{ entre } 6000 \text{ et } 7\,000)$$

Le nombre de Gushmann ainsi introduit est égal à l'expression $\frac{T_c - T_m}{T_c}$ où T_c et T_m sont les températures absolues de l'air ambiant données en °K. par deux thermomètres respectivement sec et humide.

Trois équations du même type correspondent au transfert de chaleur.

Nous étudierons plus en détail l'expression donnée par Buttler et Plewes, lors de l'exposé de nos propres recherches sur une surface plane de glace.

Convection turbulente

a) libre - Pour la convection turbulente libre, on ne trouve pratiquement pas de théorie mathématique. La très grande majorité des développements traitant de la question expose les résultats de la méthode expérimentale.

Jakob et Linke parvinrent par cette voie à l'expression

$$Nu = 0,273 (Gr \cdot Pr)^{1/3}$$

tandis que Hickok (23) aboutit à :

$$Nu = 0,645 (Gr \cdot Pr)^{1/4}$$

Mises à part les données géométriques, on constate que les paramètres les plus importants restent les nombres de Reynolds, de Grasshoff et de Prandtl.

b) forcée - Dans le cas de la diffusion forcée, Re est très grand, la diffusion molaire l'emporte sur la moléculaire et

les équations de Navier-Stokes ne sont plus applicables. Il est alors nécessaire de s'orienter vers l'analogie que Reynolds formula en 1875, entre le transfert de la quantité de mouvement et celui de la quantité de chaleur. Cette analogie a cependant le grave défaut de ne pas être valable au voisinage d'une paroi solide, ce qui est, pour le cas présent, la disposition généralement la plus adoptée. Il faut donc, en conservant le principe de cette analogie, la modifier et l'amener à être utilisable dans le cas de l'évaporation. On a ainsi pu montrer que la rugosité faisait croître dans le même rapport la résistance (transfert de quantité de mouvement) et le transfert de chaleur.

Taylor et Prandtl (24) parvinrent à étendre l'analogie de Reynolds en considérant que, dans la région proche de la paroi, la conductivité thermique et le coefficient de diffusion molaire (turbulente) étaient très différents. En intégrant l'expression mathématique de ces deux effets, à travers une région du film laminaire où le coefficient de diffusion molaire est négligeable, Taylor établit une relation que Prandtl rendit applicable en supposant qu'un rapport qui y était contenu variait comme la racine huitième du nombre de Reynolds. L'ensemble obtenu, valable pour un nombre de Reynolds voisin de un, présentait cependant une discontinuité à la jonction de la couche laminaire où seule existe la diffusion moléculaire et la couche turbulente où la diffusion molaire est prépondérante.

Karman (25), pour assurer une transition raisonnable entre ces deux domaines, proposa, pour la zone de jonction des couches, une relation entre les deux coefficients de diffusion. Il choisit ensuite une forme de la composante de la vitesse locale instantannée pour chacun des deux domaines, en particulier une distribution logarithmique pour la zone turbulente et, pour la zone de transition, une distribution marquant une certaine continuité entre les deux domaines extrêmes. Cette convention aboutit à des résultats comparables à ceux obtenus par Taylor

et Prandtl et, si la discontinuité n'est pas totalement supprimée, elle n'existe plus que pour des cas rarement atteints. L'expression obtenue donne un nombre de Nusselt en accord avec l'expérience jusqu'à des nombres de Prandtl voisins de 10 alors que l'expression de Taylor-Prandtl donnait pour cette zone des résultats trop faibles. Au-delà, les expériences n'ont pas été réalisées et l'expression prend une forme asymptotique : $Nu = 0,104 Re^{7/8}$.

En supposant différentes les distributions de vitesse dans les trois régions, Hoffman (26) en 1940, trouva encore une autre expression pour Nu et Mattioli (27) aussi en 1940, en trouva encore une plus compliquée en partant du tenseur des efforts.

Enfin, parallèlement à ces constructions mathématiques, plusieurs chercheurs obtinrent des équations purement empiriques. Ainsi Kraussold (28) compara transfert de chaleur et transfert de quantité de mouvement et détermina deux expressions de Nu variant très peu : la première valable pour un échauffement, la seconde pour un refroidissement :

$$Nu = 0,024 Re^{0,8} . Pr^{0,37} \quad \text{et} \quad Nu = 0,024 Re^{0,8} . Pr^{0,30} .$$

Dittus (29) et Boelter en 1930 n'en avaient trouvé qu'une pour les deux cas :

$$Nu = 0,0254 Re^{0,8} . Pr^{0,35} .$$

On peut cependant remarquer la similitude de ces diverses expressions.

Notons enfin le travail réalisé par Sutton (30) en 1934. Utilisant l'équation de Karman et la notion de mélange continu, il aboutit à une équation assez complexe où l'on trouve, avec le nombre de Reynolds, des fonctions trigonométriques et des séries.

Si nous cherchons à comparer les diverses expressions obtenues par voie mathématique à partir des extensions de l'analogie de Reynolds, nous constatons que les équations de

Karman, Hoffman et Mattioli aboutissent à la même expression du coefficient du transfert de chaleur. Cette dernière n'envisage toutefois pas, un gradient de pression, pourtant réel dans l'écoulement. Leurs expressions de Nu sont identiques pour $Pr = 1$ ce qui est tout de même assez restrictif. Si l'on considère toutefois, le faible éventail des températures usuelles et la faible épaisseur du film laminaire, on s'aperçoit que les erreurs sont finalement minimales et, dans le cas d'une paroi plane où sont vérifiées la plupart des hypothèses de base, ces expressions deviennent très raisonnablement admissibles.

Si les analogies précédentes ont principalement porté sur les transferts de quantité de mouvement et de chaleur, ce sera le transfert de masse, de vapeur, qui nous intéressera surtout pour l'évaporation. Les expressions de Karman peuvent facilement donner la valeur du coefficient de ce dernier transfert. On a alors une valeur fixe du nombre de Prandtl qui, pour la diffusion de la vapeur d'eau dans l'air est égal à 0,6. Les expressions obtenues par ce procédé, surtout pour les nombres de Reynolds élevés, n'ont cependant jusqu'ici, reçu aucune confirmation expérimentale.

Depuis quatre ou cinq ans, la question de l'évaporation et de la sublimation sous l'action d'un courant gazeux semble soulever un intérêt grandissant.

L'évaporation par l'air était, dans les bacs de Cumming mesurée par la baisse de niveau de la surface libre. Ce procédé fut encore utilisé, mais avec un corps solide à sublimer, par Sherwood et Träss (31) qui, en 1960, publièrent un travail sur le taux des échanges massiques par sublimation à partir d'une plaque plane adiabatique dans des écoulements d'air. Ils étudièrent en particulier la décroissance d'une couche de naphthalène et les phénomènes de friction et de transfert de chaleur pour des échanges massiques de faible débit.

H.H. Sogin (32), en 1956, opéra aussi avec du naphthalène et même du paradichlorobenzène. Il étudia l'action d'un courant

d'air arrivant normalement à la surface. Le corps à sublimer, sous forme de disque plat de 7 à 10 cm de diamètre était , tantôt serti dans une plaque plane et n'exposait alors que sa surface circulaire à un courant d'air horizontal, tantôt fixé au bout d'un axe parallèle à la direction du vent.

Dans les deux cas le courant d'air s'écrasait sur la surface. Dans le premier, il s'échappait selon une direction verticale vers le haut et vers le bas ; dans le second, dès le pourtour du disque atteint il reprenait la direction initiale horizontale.

Dans plusieurs séries d'expériences, Sogin étudia le comportement de ses disques soit exposés à l'intérieur même d'un tunnel à vent de 12,5 cm de diamètre, soit maintenus hors de ce tunnel et frappés par un jet d'air sortant d'une tuyère de 25 cm de diamètre. La vitesse du vent variait de 6 à 88 m/sec et les valeurs du nombre de Reynolds s'étalaient entre 2 000 et 600 000 . L'auteur a surtout cherché dans ce travail à montrer la similitude : transfert de masse, transfert de chaleur.

Powell, utilisant un appareil semblable, a étudié l'évaporation de l'eau. Pour obtenir une surface liquide verticale il utilisa des disques de papier ou de tissu imbibés d'eau et placés dans une soufflerie. Celle-ci avait une section carrée de 54 cm de côté, les diamètres des disques humides variaient de 5 à 20 cm, la vitesse de l'air était voisine de 40 m/sec. et le nombre de Reynolds pouvait prendre des valeurs comprises entre 2 000 et 58 000.

Les résultats de Powell, comme ceux de Sogin, ne sont que modérément disséminés et ne s'éloignent pas de la courbe moyenne de plus de 5 % de part et d'autre de celle-ci . Etant donnée la complexité du phénomène il faut considérer que c'est là une marge bien faible.

Si m est la quantité évaporée, A la surface exposée, D le diamètre du disque et p_g la pression de vapeur saturante du corps à sublimer, l'équation de Powell peut se mettre sous la

forme :

$$\frac{m}{A} \frac{D}{(p_s - p_b)} = 10^{-3} \cdot 0,33 (V D)^{0,56}$$

où p_b est la pression de vapeur du corps dans l'air incident et V la vitesse de cet air. Les divers facteurs sont exprimés en cm/sec, gr et mm de mercure.

Si V est toujours la vitesse, D le diamètre et v la viscosité de l'air, Sogin donne pour expression sans dimension résultant de ses travaux :

$$G \left(\frac{V D}{v} \right)^{0,5} = 1,08$$

ou $G = \frac{h}{v \cdot c_p} Pr^{2/3}$ avec h : coefficient de transfert de chaleur et c_p la chaleur spécifique de l'air à pression constante.

L'expression de Powell peut d'ailleurs se mettre sous une forme identique :

$$G \left(\frac{V D}{v} \right)^{0,5} = 0,625 \left(\frac{V D}{v} \right)^{0,06}$$

Les travaux qui viennent d'être cités portent sur des plaques perpendiculaires à la direction du courant d'air incident. Albertson, étudia en 1955 l'influence du vent sur une surface horizontale. Abandonnant la technique des bacs, enfouis ou non, il opéra surtout dans de grandes souffleries atteignant à Iowa une section de 2 mètres sur 1,13 m et à Coloraso 2m sur 2m. Il travailla enfin sur une maquette du lac Hefner à l'échelle 1/2 000 de plus de 2 m² dans une tuyère de 3 m de large et de 9 m de long.

Pour éviter que l'eau ne se ride sous l'action du vent, il utilisa des plaques poreuses dont la partie inférieure plongeait dans de l'eau. Ce système permettait à l'humidité de monter par capillarité et de maintenir la surface constamment mouillée. Pour le modèle réduit du lac il fallut utiliser du plâtre continuellement tenu humide.

Les vitesses du vent pouvaient atteindre jusqu'à 8 m/sec et la puissance des moteurs actionnant l'hélice proportionnant le

vent pouvait s'élever à 274 C.V.

L. Kaiser (33) enfin, a cherché à montrer que les transferts de chaleur et de masse entre gaz et liquide, s'ils leur sont ressemblants, ne s'identifient cependant pas parfaitement aux mêmes transferts entre gaz et solide.

Cet auteur utilisa la théorie des films interfaciaux de Lewis et Whitman (34) et substitua à la distinction entre écoulements laminaire et turbulent, une différence entre un régime oscillant et un régime non oscillant de l'interface, ce dernier correspondant au seul régime laminaire d'écoulement et satisfaisant à la théorie des films.

Selon Kaiser, le régime oscillant de l'interface s'établissant pour les vitesses plus élevées, la fréquence des oscillations augmente et crée des écarts de plus en plus importants à cette théorie des films, l'interface finissant par brasser les phases. Ce concept de régime oscillant, s'il est applicable pour un liquide ne semble plus l'être pour un solide et met en évidence une différence entre les deux catégories de transfert.

Nous avons tenu à relater moins sommairement ces récentes recherches afin de souligner le caractère d'actualité de ces études qui, depuis moins de dix ans, semblent soulever un très grand intérêt tant Outre-Atlantique que, nous l'avons vu dans l'étude théorique, dans l'est-européen.

Chapitre II

INFLUENCE DE L' ANGLE D' INCIDENCE

L'arrivée d'un courant d'air accélère l'évaporation d'une surface plane. Il entraîne les molécules échappées dans une direction générale qui varie avec l'incidence.

Lorsque le courant d'air arrive tangentielllement à la surface, les molécules qui, en moyenne, s'échappent selon une direction normale à cette surface, sont prises de plein fouet par le courant gazeux et sont poussées, latéralement, hors de la zone surplombant les points de départ. Les directions moyennes des deux courants sont orthogonales et, dans ce cas, les molécules ne peuvent retourner sur la surface en évaporation.

Quand, au contraire, le courant d'air arrive perpendiculairement à cette surface, les molécules qui s'en échappent sont replaquées contre celle-ci et, à la sortie du solide, existe une zone : bouchon à forte densité de vapeur, qui ralentit très nettement le phénomène. Ce dernier, cependant, ne cesse pas : si l'air arrive, il doit repartir et il entraîne alors un peu de vapeur. L'arrivée perpendiculaire de l'air n'est qu'une conception théorique et non littéralement réalisable : l'air doit s'échapper, il crée donc pour ce faire, un courant parallèle à la surface qui perturbe fortement les effets du courant d'arrivée et introduit dans les résultats une forte conséquence du premier cas.

La troisième hypothèse est l'arrivée de biais du courant gazeux. Ce cas est intermédiaire entre les deux précédents.

Si la direction du courant d'air fait un angle α avec la normale au plan d'évaporation (fig.1), on peut chercher, pour un libre parcours moyen donné, les facteurs essentiels qui jouent sur le nombre de retours. Nous aurons choc entre la molécule fugitive et la surface quand la distance OA sera supérieure à OC. Or on a : $OC = OI \operatorname{tg} \alpha$

Pour OI constant on aura donc choc si

$$OA > OI \operatorname{tg} \alpha \quad (1)$$

et départ définitif dans le cas contraire.

Les facteurs essentiels sont donc :

- la valeur de l'angle α et surtout de sa tangente
- la distance OA.

Si $\alpha = 0$, le courant d'air arrive perpendiculairement à la surface et $OI \operatorname{tg} \alpha$ est nul. Il y a toujours retour.

Pour $\alpha = 90^\circ$, l'arrivée d'air est tangentielle, $OI \operatorname{tg} \alpha$ est infiniment grand et toutes les molécules sont évacuées.

Pour une valeur intermédiaire de α la possibilité des chocs est indiquée par l'inéquation (1).

La distance OA intervient aussi. Si l'on veut peu de retours, donc une forte évaporation au cm^2 , il faut une petite surface. Toute augmentation de l'aire d'évaporation, dans le

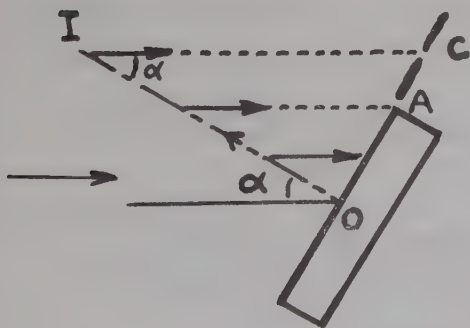


fig 1

sens OA, si elle fait croître la quantité totale de produit sublimé, diminue l'évaporation par cm^2 , en offrant une plus grande surface de réception aux molécules qui reviennent.

Nous avons, en quelques lignes et d'une manière très sommaire, esquissé une façon mathématique de présenter le problème.

Là encore, à côté d'une démonstration théorique n'envisageant que l'arrivée des gaz, il faut opposer le côté pratique qui

bouscule dans de grandes proportions les résultats de cette conception utopique. L'air incident doit s'écouler, il le fait en rasant la surface si bien que celle-ci, sur une grande partie, pour ne pas dire la totalité, se trouve lée non pas par une arrivée normale et brutale d'air mais par un courant tangentiel.

Quelque soit le cas envisagé parmi les trois présentés plus haut, la très grosse majorité du phénomène se produit avec une incidence rasante et donne une évaporation commune à toutes les positions. L'angle d'incidence n'intervient que pour une faible proportion et met alors en évidence une évaporation maximale lorsque le courant gazeux arrive tangentielllement à la surface.

Pour ces raisons on peut prévoir pour les courbes expérimentales, un aspect mettant en évidence une évaporation non négligeable lors de l'incidence normale, une croissance de cette évaporation lorsque α augmente et un maximum pour l'incidence rasante.

Pour les cas intermédiaires un aspect régulier de la courbe est loin de s'imposer. Rien ne prouve en effet, que la transformation du courant incident en courant tangent se produise selon une loi identique ou semblable à celle de la variation de $\text{tg } \alpha$.

Etude expérimentale

Pour étudier un phénomène aussi complexe, la méthode expérimentale semble la plus indiquée.

Nous avons réalisé le montage schématisé figure 2 . Une tuyère horizontale produit un courant d'air à la vitesse constante de 365 cm/sec soit environ de 13 Km/h.

On ne commençait les mesures que lorsque l'atmosphère du local avait atteint un équilibre voisin de 20° C.

Comme Sogin nous avons utilisé du paradichlorobenzène.

Ce corps, solide à la température ambiante, a une pression de vapeur assez importante : 0,64 mm de Hg à 20°C. et présente, quant aux manipulations, des avantages non négligeables. Il fond à 53°C. sans se décomposer et se prête facilement au moulage. Il est d'autre part d'une faible toxicité, cet inconvénient étant sans grande importance puisque les vapeurs étaient constamment refoulées vers l'extérieur pour permettre à l'air incident d'être totalement dénué de cette sorte de vapeur.

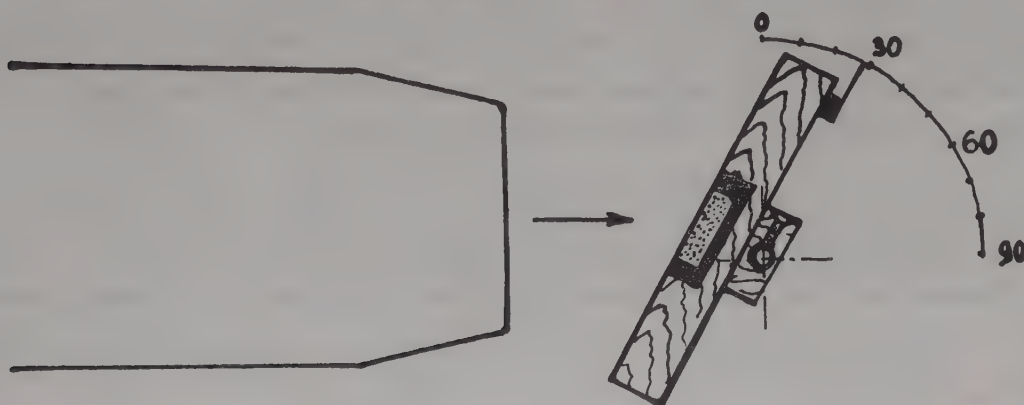


figure 2

Sogin, dans ses essais, n'utilisa que des disques de naphthalène et de paradichlorobenzène normaux à la direction du courant d'air et il fit toutes ses mesures dans ces conditions.

Avant de procéder à toutes les études qui suivront nous avons cherché à obtenir la position donnant l'évaporation la plus importante.

La position adoptée par Sogin présente d'autre part l'inconvénient de combiner deux écoulements, l'un normal, l'autre tangent, tels que leur proportion dans l'ensemble du courant fluide est très difficile à déterminer et, surtout, varie considérablement avec les dimensions du corps à sublimer.

Il fallait absolument voir si cette position inconfortable pouvait être abandonnée, en particulier, en faveur de l'arrivée tangentielle qui ne présente qu'une direction d'écoulement et semble donc considérablement simplifier la question .

Toujours dans le but de tenter d'obtenir des résultats pouvant être extrapolés et appliqués à des surfaces plus grandes ou plus petites, nous avons tenu à ce que le courant gazeux soit en état d'équilibre à son arrivée sur le corps à évaporer. Dans ce but, ce corps était enchassé dans un plateau et présentait sa surface plane dans le prolongement du plan de l'enca-drement. Le courant tangentiel avait ainsi le temps de s'établir avant son contact avec la paroi expérimentale et présentait un régime d'équilibre stable durant l'évaporation.

Le plateau était mobile autour d'un axe horizontal perpendiculaire à la direction du courant d'air. Un index se déplaçait devant un cercle gradué indiquant l'inclinaison donnée au plateau et à la plaque. La division 0 correspondait à un ensemble vertical.

Le paradichlorobenzène était coulé dans un coffret en plâtre dont les parois antérieures étaient arasées pour être dans le même plan que la surface d'évaporation et le plateau. Les parois internes du bloc de plâtre étaient vernissées afin d'éviter des infiltrations du corps à évaporer dans les parois et des résurgences sur les bords du coffret qui pouvaient augmenter, et de façon non mesurable, la surface exposée et donc fausser les résultats.

Durant un temps donné, souvent 5 minutes, et pour une incidence choisie, on faisait passer le courant d'air horizontal sur la surface de paradichlorobenzène enchassée dans son bloc de plâtre. L'ensemble était pesé avant et après l'opération et donnait ainsi la possibilité de mesurer l'évaporation. Ces mesures répétées de 150 à 200 fois à chaque inclinaison de la surface nous ont permis de déterminer l'évaporation moyenne

pour une telle position.

Il nous a été permis, d'autre part, de constater que l'évaporation était rigoureusement proportionnelle à la durée de l'opération.

La température était toujours comprise entre 19°C et 21°C. Les corrections nécessaires ont été effectuées pour obtenir des résultats valables pour 20°C.

Les résultats peuvent se résumer par le tableau suivant et par la courbe de la figure 3.

α	0	15°	30°	45°	60°	75°	90°
évaporation mg / cm ² .h.	19,5	20,3	22,49	23,4	23,5	24,9	31,4

α	105°	120°	135°	150°	165°	180°
évaporation mg / cm ² . h	28,5	24,5	17,4	16,5	16,5	15,1

Les valeurs de loin les plus importantes sont celles qui correspondent aux inclinaisons du premier quadrant où α varie de 0° à 90°. Les valeurs suivantes correspondent à une disposition bien particulière de la surface : ce n'est pas le courant gazeux qui la frappe directement, mais les tourbillons qui lèchent la face postérieure du corps à sublimer. Cette turbulence

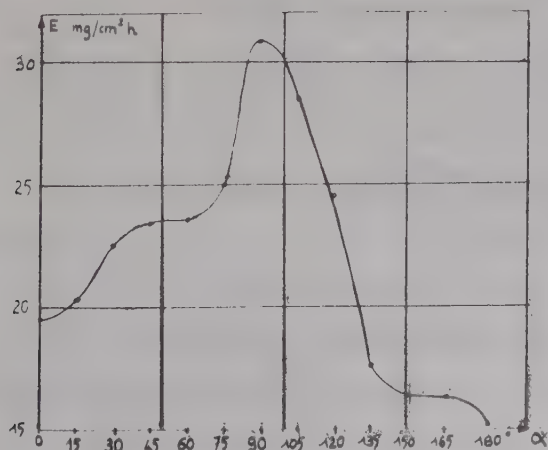


fig.3

n'étant pas rigoureusement reproductible pour différentes sortes de surface, il faut considérer que les résultats donnés ici sont valables pour la disposition particulière du montage et fournis à titre indicatif.

Contrairement aux valeurs relatives au premier quadrant qui sont générales, celles qui correspondent à des angles compris entre 105° et 180° doivent donc être utilisées avec le maximum de précautions.

Il est possible de construire avec ces nombres une courbe en coordonnées polaires. A un cercle initial, on peut retrancher sur les rayons correspondants aux incidences mentionnées plus haut des longueurs proportionnelles à l'évaporation. Cette façon d'opérer permet d'obtenir de façon théorique le profil que présenterait une sphère ou un cylindre d'axe horizontal, soumis de plein fouet, à l'action du courant d'air (fig 4).

Cette façon de voir, si elle est valable pour une représentation graphique arbitraire, n'est cependant pas transposable à la réalité. Une remarque consisterait à dire : dès

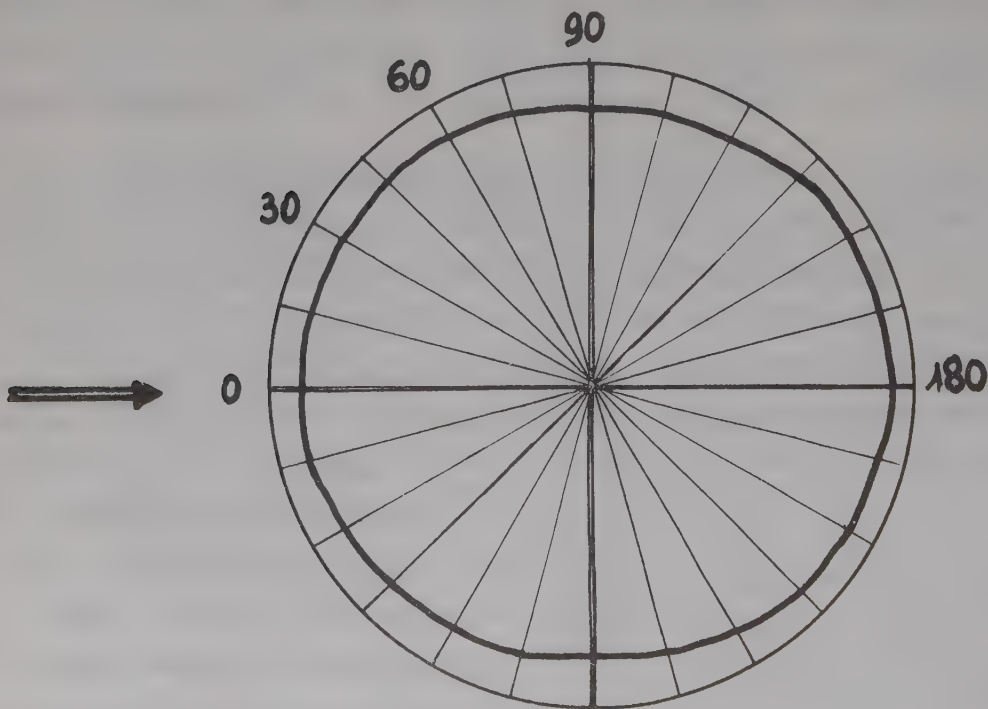


figure 4

les premières minutes, le profil ne sera plus circulaire et l'usure, l'évaporation des parois, feront que l'incidence ne sera pas constante pour un rayon donné, la sublimation ne

s'effectuant pas uniformément.

S'il n'y avait que cet inconvénient, la couche enlevée restant tout de même minime, le profil du cylindre donnerait malgré tout une approximation valable de l'évaporation, mais il y a plus grave . Le courant d'air arrive horizontalement , il frappe la surface verticale la plus proche du corps à évaporer et se sépare en deux parties mais il ne reste pas laminaire. Dès le bord supérieur du cylindre atteint, on assiste à la formation de tourbillons qui neutralisent l'action du vent qui parvient à son tour à cette partie supérieure et

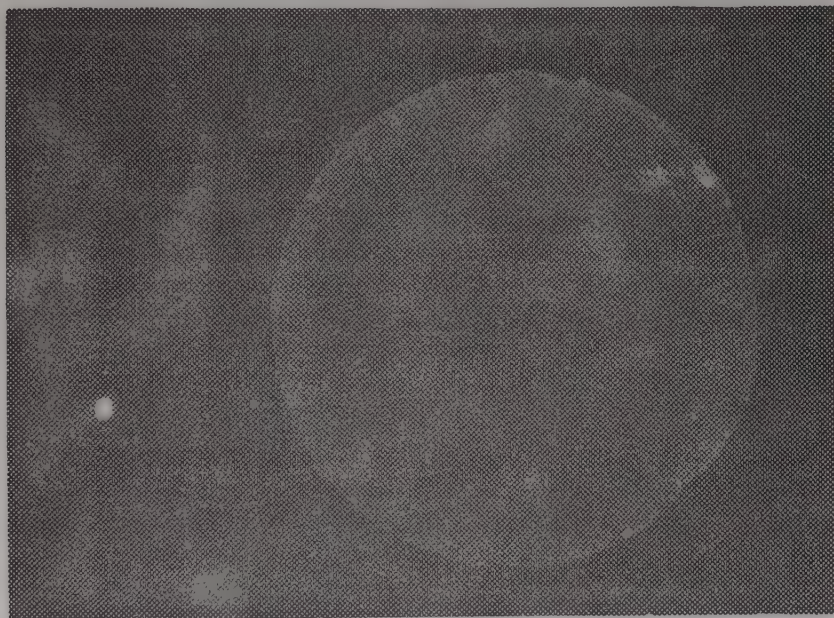


figure 5

qui creusent ... la partie postérieure du bloc, enlevant ainsi toute signification à l'observation du profil étudié.

Nous avons réalisé l'expérience et présentons les clichés :

- 1) du cylindre initial vu de bout. Une flèche indique la direction du vent qui le frappera. C'est la figure 5 représentée ci-dessus.

- 2) du profil obtenu à la fin de l'expérience qui avait duré sept heures (fig.6).

-.3) Une vue de côté du cylindre après l'expérience. On a côte à côte deux zones, l'une usée, l'autre à l'état initial (le paradichlorobenzène y était à l'abri du courant gazeux , protégé par une bande de ruban adhésif). La surface usée est très polie et le vent venait de face (fig 7).

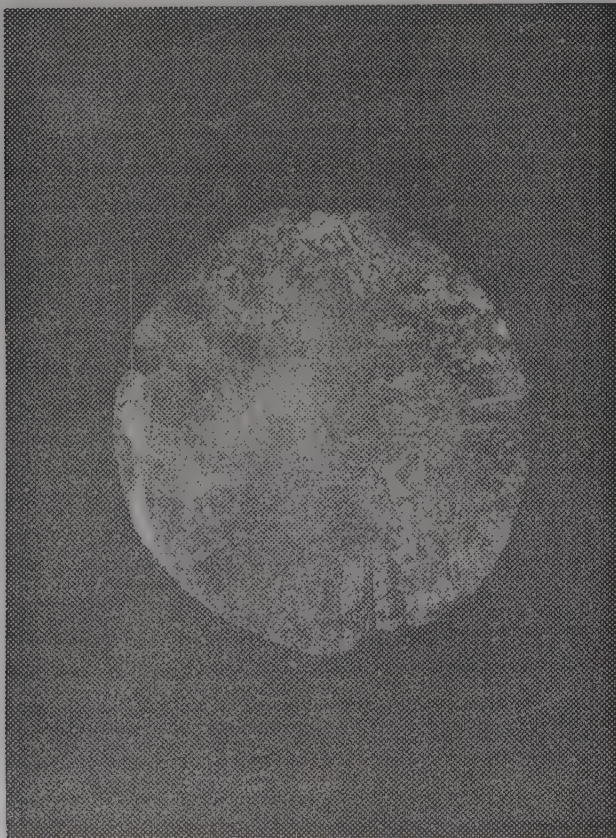


figure 6

Pour les raisons exposées plus haut, ces clichés , intéressants du point de vue documentaire, sont loin de constituer, comme on aurait pu le croire, une expérience récapitulative des mesures consignées dans le tableau précédent.

De ces expériences on peut tirer des conclusions dont

il sera tenu compte dans toute la suite de ce travail :

- Pour un courant d'air horizontal, une position de la plaque à évaporer s'impose : l'incidence devra être rasante et aura ainsi deux avantages :

- donner une évaporation maximale : résultat appréciable quand on pense aux faibles quantités évaporées et à la diminution de l'erreur relative, en particulier lors des pesées.



figure 7

- suppression pure et simple des courants parasites et incontrôlés. Seule la recherche de l'incidence rasante permet ce résultat. Toute autre position du bloc fait s'ajouter au vent sélectionné par l'incidence choisie, un courant

tangentiel dont il n'est pas possible de déterminer avec précision les caractéristiques et les effets.

Contrairement à la disposition qu'avait préférée Sogin, nous adopterons donc pour tout ce qui suit : l'incidence rasante.

Chapitre III

INFLUENCES DE LA TEMPERATURE ET DE LA VITESSE SUR LA SUBLIMATION D'UNE PLAQUE PLANE DANS UN COURANT D'AIR LAMINAIRE

Aperçu théorique de l'influence de la vitesse

Norris et Streid ont défini un "conduit plat" comme un conduit à section rectangulaire dont la largeur est grande vis-à-vis de la hauteur.

Dans la majorité des cas que nous rencontrerons dans l'étude expérimentale qui suivra, cette expression se trouve justifiée ; elle réduit le problème à une étude sur deux dimensions.

R.M. Butler et A.C. Plewes (35) ont procédé, dans le cas d'un solide tapissant en partie la base d'un tel conduit, à l'étude théorique du phénomène.

Nous résumerons leur travail qui s'applique parfaitement à nos mesures. Rappelons l'analogie poussée qui existe entre la conduction de la chaleur dans un courant fluide et la diffusion de la matière en un tel courant. Les équations des deux phénomènes se correspondent et il arrive fréquemment , dans le cas de la convection laminaire forcée, d'établir le parallèle entre les diverses expressions.

Soit un conduit plat parcouru par un courant d'air laminaire. Sa base est formée d'un solide volatil qui s'évapore et diffuse dans le courant gazeux. Nous envisageons une coupe longitudinale de la section du tube.

Nous disposons d'un élément de volume parallélipipédique

dont les arêtes sont parallèles aux axes principaux de coordonnées. Sa hauteur dh est verticale et l'on a dans le plan horizontal, la longueur dL de l'élément dans le sens du courant d'air et, perpendiculairement à cette direction, la profondeur que nous prenons égale à l'unité.

Le volume de cet élément est donc $dL.dh.l$ et l'aire de la surface traversée normalement par le courant d'air est égale à $dh.l$. La base du parallélépipède à travers laquelle passera le flux ascendant de la diffusion aura une surface de $dL.l$.

La loi de Fick donne pour la diffusion :

$$J = - D \frac{\partial c}{\partial x} \quad (2)$$

où J est la quantité de matière traversant perpendiculairement l'unité de surface durant l'unité de temps, D le coefficient de diffusion et le rapport : le gradient d'accroissement de la concentration suivant la direction Ox .

Si nous prenons comme grandeur pour c le rapport de la pression partielle p du solide volatil au lieu considéré à la pression totale P considérée comme fixe par convention, nous avons pour le cas présent :

flux ascendant à travers l'unité de surface et par seconde :

$$J = - D \frac{\frac{\partial p}{p}}{\partial h}$$

soit, puisque P a été supposé constant :

$$J = - \frac{D}{P} \frac{\partial p}{\partial h}$$

et ceci pour l'unité de surface.

Ici, la diffusion s'effectue à travers une surface $dL.l$, donc :

$$J' = - \frac{D}{P} \left(\frac{\partial p}{\partial h} \right) dL$$

Nous avons là l'expression du flux ascendant de

vapeur issue du solide volatil, à travers la surface de base horizontale de l'élément de volume considéré.

Le flux entrant par la base inférieure d'ordonnée h_0 sera :

$$J'_{h=h_0} = - \frac{D}{P} \left(\frac{\partial p}{\partial h} \right)_{h=h_0} dL$$

Le flux sortant par la base supérieure d'ordonnée $h_0 + dh = h$ sera :

$$J'_{h=h_0+dh} = - \frac{D}{P} \left(\frac{\partial p}{\partial h} \right)_{h=h_0+dh} dL$$

soit

$$\Delta J' = J'_{h_0+dh} - J'_{h_0} = - \frac{D}{P} dL \left[\left(\frac{\partial p}{\partial h} \right)_{h_0+dh} - \left(\frac{\partial p}{\partial h} \right)_{h_0} \right]$$

Lorsque dh tend vers zéro on obtient à la limite :

$$\Delta J' = \left(\frac{\partial J'}{\partial h} \right) dh$$

donc finalement

$$\Delta J' = - \frac{D}{P} dL \left(\frac{\partial \left(\frac{\partial p}{\partial h} \right)}{\partial h} \right) dh$$

ou encore

$$\Delta J' = \frac{\partial}{\partial h} \left(- \frac{D}{P} \left(\frac{\partial p}{\partial h} \right) dL \right) dh$$

L est une variable indépendante de h et $-\frac{D}{P}$ est une constante donc

$$\Delta J' = - \frac{D}{P} \left(\frac{\partial^2 p}{\partial h^2} \right) dh dL$$

Ceci est la limite de la différence entre les flux sortant et entrant. C'est encore la variation du flux traversant le volume donc ce qui reste par seconde à l'intérieur du volume et qui s'y accumule.

Nous avons envisagé le transport vertical de la matière, étudions maintenant celui qui s'effectue dans le sens du courant gazeux.

Distance parcourue en une seconde par le courant d'air : v cm

Volume balayé par seconde (section traversée : dh) : $v.l.dh$

Participation du sublimat à l'occupation du volume : $\frac{p}{P} \cdot v \cdot l \cdot dh$

Si r est la densité du courant d'air en moles/cm³, la quantité de sublimat contenue dans le volume balayé peut s'exprimer par :

$$\frac{p}{P} r v \cdot dh$$

Mais p n'est pas constant, il varie avec la position de la section traversée par le courant gazeux.

La quantité de sublimat qui nous intéresse est le poids apporté ou enlevé. Nous devons donc travailler avec la variation de pression Δp . Nous avons à la limite pour $dL \rightarrow 0$:

$$\Delta p = \left(\frac{\partial p}{\partial L} \right) dL \quad (3)$$

On obtient alors pour expression de l'accroissement du débit horizontal en sublimat, dans la direction du courant gazeux :

$$\Delta J'' = \frac{\Delta p}{P} r v dh \quad \text{soit à la limite :}$$

$$\Delta J'' = \frac{r v}{P} \left(\frac{\partial p}{\partial L} \right) dh dL$$

Lorsque la diffusion a atteint son équilibre il n'y a ni accumulation ni disparition de matière. La somme des transferts horizontal et vertical est nulle et l'on obtient :

$$\Delta J' + \Delta J'' = 0 = - \frac{D}{P} \left(\frac{\partial^2 p}{\partial h^2} \right) dh dL + \frac{r v}{P} \left(\frac{\partial p}{\partial L} \right) dh dL$$

ou

$$0 = \frac{1}{P} dL dh \left(-D \frac{\partial^2 p}{\partial h^2} + r v \frac{\partial p}{\partial L} \right)$$

et ce quels que soient p , dL et dh d'où :

$$r v \left(\frac{\partial p}{\partial L} \right) = D \left(\frac{\partial^2 p}{\partial h^2} \right)$$

soit :

$$\frac{\partial^2 p}{\partial h^2} = \frac{r v}{D} \left(\frac{\partial p}{\partial L} \right)$$

Partant des hypothèses suivantes :

- il n'y a pas de diffusion, soit selon la longueur, soit selon la largeur du conduit.
- le mélange air-vapeur est suffisamment dilué pour que la pression partielle de l'air dans le mélange puisse être considérée comme constante, on peut donc, pour un élément infinitésimal situé à l'intérieur du conduit, poser l'équation:

$$\frac{\partial^2 p}{\partial h^2} = \frac{r v}{D} \left(\frac{\partial p}{\partial L} \right) \quad (4)$$

où D est le coefficient de diffusion en moles par cm et par sec
 r la densité du courant d'air en moles par cm³ et
 v la vitesse instantanée de l'air au point considéré.

Si au contact des parois, supérieure et inférieure, du conduit, la vitesse est nulle et si l'on admet une distribution parabolique de celle-ci avec un maximum à mi-hauteur on a :

$$v = 6 V \left(\frac{h}{H} - \frac{h^2}{H^2} \right)$$

où V est la vitesse moyenne à travers le conduit et H la hauteur du tube. Reportée dans l'équation (4) cette expression donne :

$$\frac{\partial^2 p}{\partial h^2} = \frac{6 r V}{D} \left(\frac{h}{H} - \frac{h^2}{H^2} \right) \frac{\partial p}{\partial L} \quad (5)$$

Pour simplifier cette expression on peut faire un changement de variables et en adopter de nouvelles qui n'aient pas de dimension physique. Ce changement est défini par :

$$T = \left(\frac{p}{P_v} - 1 \right) \quad x = \frac{h}{H} \quad \text{et} \quad y = \frac{D L}{6 r H^2 V}$$

où P_v est égal à la pression de vapeur du solide.

De ces changements de variables nous tirons :

$$\frac{6 r V}{D} = \frac{L y}{H^2}, \quad \frac{dx}{dh} = \frac{1}{H} \quad \text{et} \quad p = \frac{p - P_v}{P_v} \quad \text{soit} \quad p = P_v(T-1) \quad (6)$$

$$\text{d'où } \frac{\partial p}{\partial h} = \frac{\partial (P_v (T-1))}{\partial x} \frac{dx}{dh} = P_v \frac{\partial T}{\partial x} \cdot \frac{1}{H} = \frac{P_v}{H} \frac{\partial T}{\partial x}$$

en dérivant une nouvelle fois :

$$\frac{\partial^2 p}{\partial h^2} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{P_v}{H} \frac{T}{x} \right) \frac{dx}{dh} = \frac{P_v}{H^2} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}$$

en reportant dans (5) il vient :

$$\frac{P_v}{H^2} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = (x - x^2) \frac{\partial P}{\partial L} \frac{6 r v}{D}$$

soit

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = (x - x^2) \frac{\partial P}{\partial L} \frac{6 r v}{D} \frac{H^2}{P_v} \quad (7)$$

Pour avoir une expression en T, x et y, calculons en fonction de ces quantités la valeur de $\frac{P}{L}$. On a :

$$\frac{\partial p}{\partial L} = \frac{\partial p}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial y} \frac{dy}{dL} \quad (\text{le dernier rapport avec des } d \text{ droits } y \text{ ne dépendant que de } L)$$

En remplaçant ces rapports par leurs valeurs données en (6) :

$$\frac{\partial p}{\partial L} = P_v \frac{\partial T}{\partial y} \frac{D}{6 r v H^2}$$

d'où, en reportant dans l'équation (7) :

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = (x - x^2) \frac{6 r v}{D} \frac{H^2}{P_v} \frac{P_v D}{6 r v H^2} \frac{\partial T}{\partial y}$$

soit

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = (x - x^2) \frac{\partial T}{\partial y} \quad (8)$$

Elle peut être résolue pour les conditions aux limites suivantes :

- $T = 0$ quand $x = 0$ (l'air est saturé à la surface solide)
- $\left(\frac{\partial T}{\partial x} \right) = 0$ quand $x = 1$ (la vapeur ne diffuse pas au-delà du sommet du conduit)
- $T = -1$ pour $y = 0$ avec $0 \leq x \leq 1$ (l'air ne contient pas de vapeur avant d'atteindre le solide)

On obtient alors une solution de la forme $T = C_i X_i Y_i$ où $X_i Y_i$ est une solution particulière de l'équation de la forme $T = XY$ où X est une fonction de x seul et Y une fonction de y seul .

Si $T=XY$, l'équation obtenue précédemment s'écrira

$$X'' Y = (x - x^2) X Y' \quad (8')$$

car X ne dépend que de x et Y que de y . Cela peut encore s'écrire :

$$\frac{Y'}{Y} = \frac{X''}{(x-x^2) X} \quad (9)$$

Le premier membre de cette égalité étant une fonction de y seul et le second de x seul, l'égalité ne peut avoir lieu que si chacun de ces membres est constant. Nous les poserons donc égaux à $-n^2$.

L'équation en Y : $Y' = -n^2 Y$ s'intègre directement en

$$Y = A e^{-n^2 y} \quad (10)$$

où A est une constante d'intégration.

X sera défini par l'équation différentielle :

$$X'' + n^2 (x - x^2) X = 0 \quad (11)$$

Nous pouvons chercher une solution de X donnée par une série de puissances, satisfaisant à l'équation différentielle (11) donc de la forme :

$$X = a_0 + a_1 x + a_2 x^2 + \dots + a_r x^r$$

La condition $T = 0$ quand $x=0$ nous indique $a_0 = 0$. On a alors

$$n^2 x X = n^2 a_1 x^2 + n^2 a_{r-3} x^{r-2} + n^2 a_{r-2} x^{r-1} + n^2 a_{r-1} x^r + n^2 a_r x^{r+1}$$

$$-n^2 x^2 X = -n^2 a_1 x^3 - n^2 a_{r-4} x^{r-2} - n^2 a_{r-3} x^{r-1} - n^2 a_{r-2} x^r - n^2 a_{r-1} x^{r+1} - n^2 a_r x^{r+2}$$

$$X'' = 2a_2 + 6a_3 x + \dots \dots + r(r-1)a_r x^{r-2}$$

soit, en additionnant ces trois équations :

$$2a_2 + 6a_3x + \dots + (r(r-1)a_r + n^2(a_{r-3} - a_{r-4})) x^{r-2} + \dots \\ + \dots + \dots - n^2 a_r x^{r+2} = 0$$

Et ceci doit être nul quelque soit x . Les coefficients devront donc satisfaire aux conditions suivantes :

$$\begin{aligned} a_1 &\neq 0 \\ a_2 &= 0 \\ a_3 &= 0 \\ \dots &\dots \\ a_r &= \frac{n^2}{r(r-1)} (a_{r-4} - a_{r-3}) \end{aligned}$$

D'autre part, la deuxième condition :

$$\left(\frac{\partial T}{\partial x}\right)_{x=1} = \left(Y \left(\frac{\partial X}{\partial x}\right)\right)_{x=1} = Y \left(\frac{\partial X}{\partial x}\right)_{x=1} = 0$$

$$\text{entraîne } \left(\frac{\partial X}{\partial x}\right)_{x=1} = 0.$$

Les coefficients jusqu'à a_{29} déterminés par la manière précédente sont fournis par un tableau donné par Butler et Plewes. On en déduit

$$\sum_{r=0}^{\infty} r a_r = 1 - 0,083333 n^2 + 0,00109128 n^4 - 0,05566173 n^6 \\ + 0,07156816 n^8 - \dots + \dots - \dots = 0$$

Nous avons là une équation en n qui a un grand nombre de racines, les deux premières étant

$$n_1^2 = 14,582 \quad \text{et} \quad n_2^2 = 141$$

Dans ce qui suit, les facteurs a_1 et A sont inclus dans C_i . Il reste maintenant à déterminer les coefficients C_i dans l'expression $T = \sum C_i X_i Y_i$ pour qu'ils satisfassent la troisième condition aux limites : $T = -1$ pour $y = 0$ avec $0 \leq x \leq 1$. Or quand $y = 0$, Y_i est de la forme $e^{-n_i^2 y} = 1$ car A est compris dans la constante C d'où

$$(T)_{y=0} = \sum C_i X_i = -1 \quad \text{avec} \quad 0 \leq x \leq 1.$$

L'équation (11) est une équation de Liouville-Sturm et il s'ensuit que les fonctions X_i forment une série orthogonale avec la fonction $(x - x^2)$. Cette orthogonalité s'exprime par

$$\int_0^1 (x - x^2) X_i X_0 dx = 0 \quad \text{quand } n_i \neq n_0$$

(on retrouve là une analogie avec le produit scalaire)

Butler et Plewes multipliant les deux membres de l'équation $\sum C_i X_i = -1$ par $X_i (x - x^2) dx$ et intégrant de $x=0$ à $x=1$ obtiennent :

$$-\int_0^1 X_i (x - x^2) dx = C_i \int_0^1 X_i^2 (x - x^2) dx \quad (12)$$

Soit, en partant de (11)

$$(x - x^2) X_i = \frac{+1}{n_i^2} \frac{d^2 X_i}{dx^2} = \frac{1}{n_i^2} \frac{d \left(\frac{dX_i}{dx} \right)}{dx}$$

De là :

$$C_i = \frac{\frac{1}{n_i^2} \left(\frac{dX_i}{dx} \right) \Big|_0^1}{\int_0^1 X_i^2 (x - x^2) dx}$$

Par une procédure similaire à celle employée par Graetz on peut démontrer que

$$\int_0^1 X_i^2 (x - x^2) dx = \frac{-1}{2n_i} \left(X \frac{\partial^2 X}{\partial n \partial x} \right) \Big|_{x=1}^{n=n_i}$$

$$C_i = \frac{2 \left(\frac{dX_i}{dx} \right)_{x=0}}{n_i X_i \left(\frac{2X}{n x} \right) \Big|_{x=1}^{n=n_i}}$$

Cela conduit à

$$C_1 = -2,1766 \quad \text{pour } n^2 = 14,582$$

$$\text{et } C_2 = -1,431 \quad \text{pour } n^2 = 141$$

d'où

$$T = - 2,1766 e^{-14,582 \gamma} X_1 - 1,431 e^{-141 \gamma} X_2 \quad (13)$$

et

$$p = P_v \left[1 - 2,1766 e^{\frac{-14,582 LD}{6 rH^2 V}} X_1 \left(\frac{h}{H} \right) - 1,431 e^{\frac{-141 LD}{6 rH^2 V}} X_2 \left(\frac{h}{H} \right) \dots \right]$$

La vitesse d'évaporation E en moles par seconde et par unité de largeur du conduit est donnée par

$$E = - \int_0^1 \frac{D}{P_T} \left(\frac{\partial P}{\partial h} \right) dl \quad (15)$$

P_T étant la pression totale dans le conduit.

Cela conduit à

$$\frac{E P_T}{P_v rHV} = 0,8956 1 - e^{-2,4303 \frac{LD}{rH^2 V}} - 0,0609 1 - e^{-23,5 \frac{LD}{rH^2 V}} + \dots$$

Or $\frac{E P_T}{P_v rHV} = 1$ pour un tuyau infiniment long donc

$$\Phi = \frac{E P_T}{P_v rHV} = 1 - 0,8956 e^{-2,4303 \gamma} - 0,0609 e^{-23,5 \gamma} \text{ moins des termes positifs inconnus} \quad (16)$$

où $\Phi = \frac{E P_T}{P_v rHV} = \frac{P_m}{P_v}$ est la saturation partielle ou le pourcentage de saturation de l'air longeant le lit solide si P_m est la pression partielle moyenne de l'ensemble de vapeur dans l'air et $\gamma = \frac{LD}{rH^2 V} = \frac{LD}{HM}$ une forme modifiée du

nombre de Graetz (M étant la vitesse molaire du flux d'air par unité de largeur du conduit).

Les résultats calculés à partir des termes donnés dans (16) seront toujours trop forts. La somme de tous les coefficients inconnus sera 0,0435 et il en découle que :

$$\Phi = 1 - 0,8956 e^{-2,4303 \gamma} - 0,1044 e^{-23,5 \gamma} \quad (17)$$

sera toujours trop faible.

On peut comparer les fonctions (16) et (17), on voit qu'elles divergent pour $\frac{1}{\psi}$ supérieur à 10.

On aboutit ainsi à des expressions fournissant la saturation partielle moyenne de l'air en fonction des diverses données longueur balayée par le courant d'air, coefficient D de diffusion vitesse moyenne V , hauteur H du conduit etc..

Si ces expressions n'ont pas tous leurs facteurs directement mesurables, ceux-ci peuvent cependant être assez facilement atteints ou évalués et les équations sont relativement faciles à utiliser.

Nous remercions encore MM Butler et Plewes pour l'autorisation qu'ils nous ont donnée de publier cette partie de leurs travaux. Nous avons voulu, quant à nous, procéder à l'étude expérimentale, nous réservant la possibilité de comparer les résultats des deux méthodes.

Etude expérimentale

Nous avons choisi comme matériel de travail, le corps le plus utilisé dans l'industrie, celui qui a le plus de chances de voir les applications industrielles de ce travail :

la glace

Sa forte tension de vapeur nous a incité à la préférer , acceptant par là-même, les multiples difficultés inhérentes à sa conservation et au refroidissement du courant gazeux destiné à la lécher.

Etant donné le but pratique que nous avons choisi pour ce travail, nous avons, malgré ces difficultés, jugé préférable d'utiliser la glace pour ne pas avoir à changer de corps de base lors du passage aux applications industrielles.

Influence de la vitesse

Nous avons cherché à déterminer la quantité réelle sublimée, par unité de surface de glace et par unité de temps sous l'action d'un courant d'air sec et froid.

Des travaux de cet ordre ont déjà été entrepris, mais avec des conditions tout à fait différentes et les résultats en sont souvent inutilisables dans les cas qui nous intéressent.

Ces auteurs ont par exemple étudié le séchage de l'argile par l'air humide (36) ou la sublimation de la glace pure, mais cette fois dans une enceinte absolument vidée des gaz autres que la vapeur d'eau.

De même, les équations de la diffusion, en adoptant le coefficient de diffusion du système H_2O - air déterminé expérimentalement par Winkelmann (37) sont illusoires puisque dans nos expériences, la glace sera baignée par un courant de gaz en mouvement dans des conditions telles que l'on ne pourra fixer avec précision l'état de turbulence.

Pour résoudre le problème nous avons construit l'appareil schématisé sur la figure 8. Un courant d'air sec et froid y passe sur une surface plane de glace.

L'appareil, marchant en circuit fermé, comprend essentiellement les organes suivants :

- A une pompe assurant la circulation des gaz
- B un système de réfrigération de l'air à trois étages : à l'eau, puis à la glace, enfin par un serpentín de cuivre plongeant dans un mélange eutectique H_2O - ClK à $-12^{\circ} C$. L'ensemble abaissait de façon stable la température de l'air à $-2^{\circ} C$.
- C un tube contenant du gel de silice pour la dessiccation du gaz.
- D la chambre de sublimation.

La température de l'air en circulation est mesurée par un thermomètre t, enfin, un anémomètre à fil chaud E peut être

branché sur le circuit afin d'estimer ou de contrôler la vitesse du courant gazeux.

La chambre de sublimation D comporte des cales d'amovibles permettant de faire varier la distance entre la voûte et la surface de la glace contenue dans le tiroir T. Ces cales d'épaisseurs variables permettent de modifier la vitesse linéaire du courant d'air, le débit du gaz dans le circuit restant fixe. Ce dispositif entraîne la constance du nombre de Reynolds

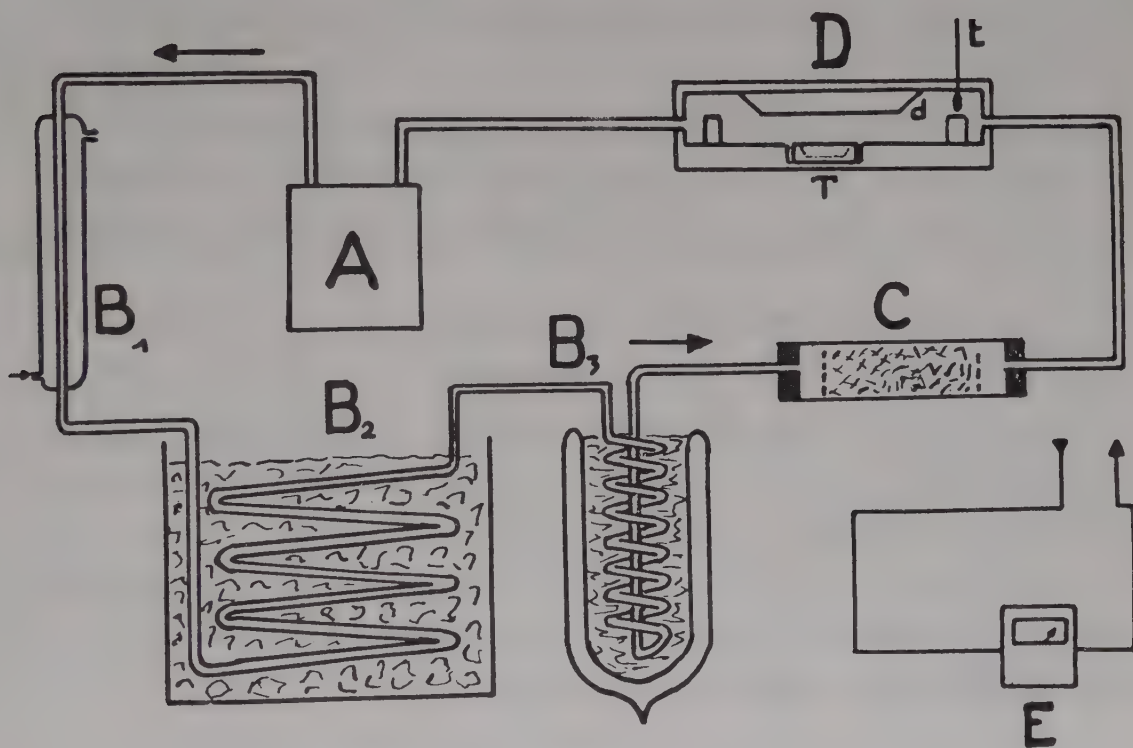


figure 8

$\frac{L v \rho}{\mu}$ et par suite du régime d'écoulement à la surface de la glace.

Le tiroir T, en matière plastique, comme les parois de la chambre D, contient l'eau congelée de telle façon que la surface supérieure de la glace soit dans le même plan que la paroi inférieure de la chambre. Le tiroir est amovible et peut

être pesé régulièrement. Les variations de masse ainsi estimées indiquent la vitesse de sublimation de la glace.

Une fenêtre de plexiglass permet l'observation de l'intérieur de la chambre de sublimation. Cette dernière, à l'exception de la petite zone qui doit être maintenue transparente et qui doit permettre l'extraction du tiroir est, comme le reste de l'appareil, soigneusement calorifugée .

Un tel montage nous a permis d'obtenir des vitesses de passage du courant gazeux pouvant varier de 2,5 à 250 Km/h. Nous avons mesuré à chaque fois la quantité de glace sublimée correspondante.

Une mesure s'effectuait selon le processus suivant :

- le tiroir, garni de glace dont la partie supérieure était arasée au niveau des parois, était rapidement et soigneusement pesé.

- introduit dans la chambre de sublimation, il y restait de 5 à 30 minutes puis en était sorti et repesé avec soin.

Ces opérations devaient être rapides pour éviter toute évaporation parasite entre l'appareil et la balance et tout dépôt de givre ou d'humidité sur le tiroir.

Avant de procéder à la mesure suivante, de l'eau devait être ajoutée et congelée pour que le niveau de la glace soit remis dans le plan des bords du tiroir.

Chaque expérience était au moins répétée trente fois . les résultats donnés plus loin pour une température de $- 2^{\circ} \text{C}$ sont la moyenne des mesures.

Malgré la complexité du phénomène, ces résultats, pour une même vitesse restent groupés. Ces nombres n'ont toutefois qu'une valeur relative : des perturbations apportées dans le circuit , comme le comble ment de la partie concave de la porte de la chambre de sublimation , décalent légèrement les chiffres mais ce décalage est constant et les résultats restent du même ordre de grandeur que ceux enregistrés avant la perturbation.

Ils permettent, avec précision, d'étudier l'évolution de la quantité de glace sublimée en fonction de la vitesse du courant d'air.

Nous obtenons le tableau de mesures suivant :

vitesse en cm par sec	67,3	126	365	530	735
vitesse en Km / h.	2,41	4,54	13,14	19,8	26,5
masse sublimée en $\text{mg cm}^{-2} \text{ h}^{-1}$	10,1	17,5	25,6	29,8	38
régime turbulent	15	19,6			

vitesse en cm par sec.	1300	2830	4680	7000
vitesse en Km / h.	46,8	102	168,5	252
masse sublimée en $\text{mg cm}^{-2} \text{ h}^{-1}$	41,5	52,3	62	65,4

Pour chaque série de mesures, l'air était porté, dans l'appareil, à la température d'étalonnage de l'anémomètre à fil chaud et ce dernier était mis en série. On vérifiait alors la vitesse de l'air.

Les résultats obtenus ont été groupés dans la courbe tracée en trait plein dans la figure 9 .

On peut remarquer que cette courbe se divise pour les faibles abscisses. Ce dédoublement a été obtenu en changeant notablement la nature de l'écoulement.

En régime normal, laminaire, on obtient la branche inférieure et la ligne continue du tableau de valeurs . Si, en amont de la surface à évaporer, on place, dans la chambre de sublimation, un ruban qui vole et claque ou une herse épaisse pour rompre le courant laminaire, on introduit des turbulences qui accélèrent la sublimation et fournissent la branche supérieure de la courbe et la dernière ligne du tableau.

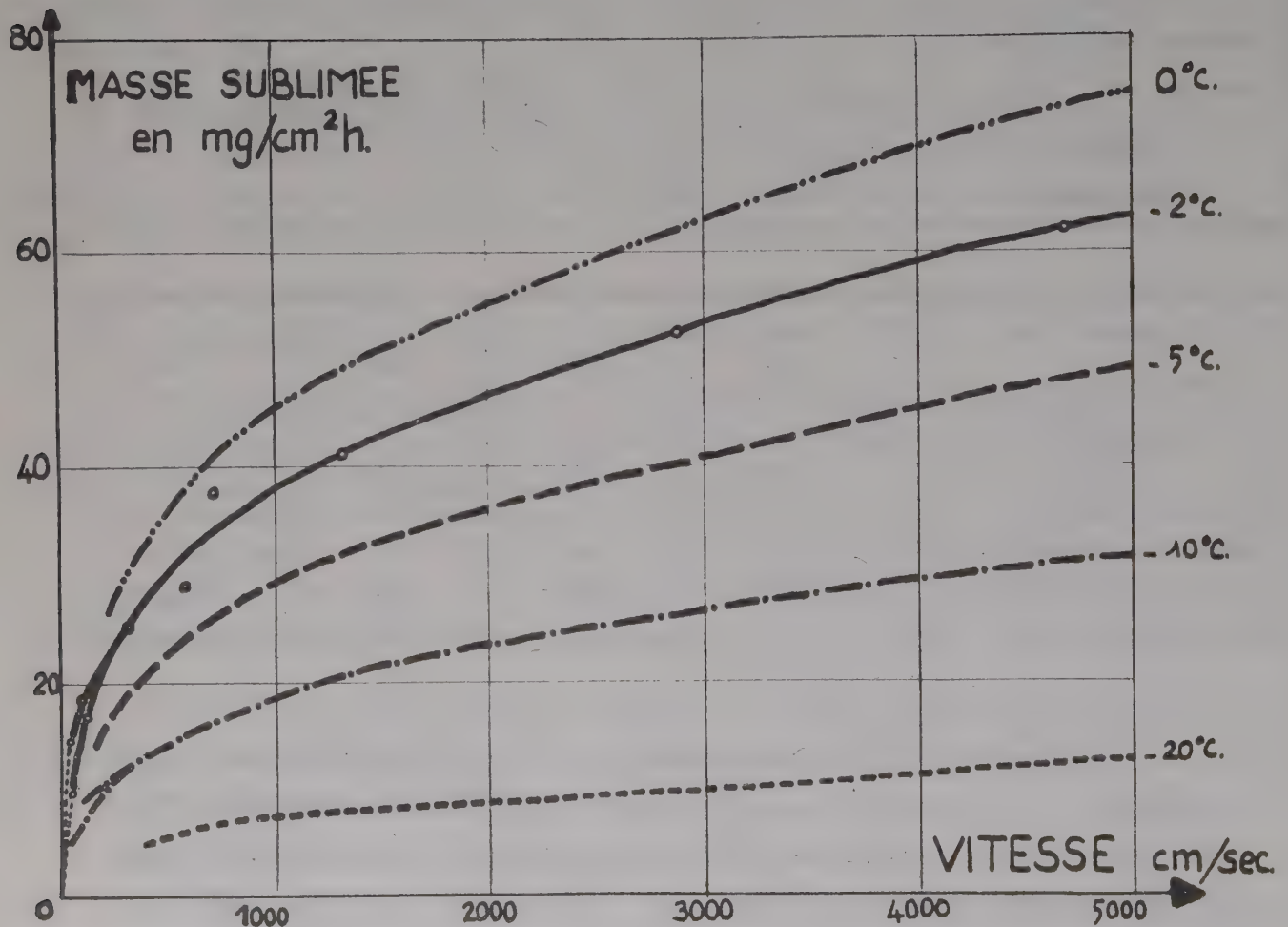


figure 9

Au-delà de 300 cm/sec les branches s'unissent et la distinction précédente ne joue plus sur l'évaporation.

A partir de cette vitesse, il est vraisemblable que les aspérités de la chambre rendent turbulent, le courant, à elles seules et que l'addition des artifices précédents n'augmente plus l'intensité des tourbillons.

On voit sur le diagramme que la vitesse de sublimation augmente rapidement pour des courants de faible rapidité, puis la courbe s'incline et le taux de croissance de l'évaporation diminue lorsque l'on atteint, pour l'air, le domaine des grandes vitesses.

Prenons un exemple : lorsque le courant gazeux passe de 50 cm/sec. à 1 000 cm/sec. (soit une multiplication par 20) la perte de masse varie de 10 à 40 mg/cm² heure et est donc multipliée par 4. Elle ne l'est que par 2,5 et passe de 40 à 100 mg / cm² h. lorsque la vitesse croît de 1 000 à 20 000 cm/sec.

Influence de la température

Les mesures faites précédemment l'ont été à - 2° C. Il existe cependant certains produits qui forment des eutectiques fusibles à une température inférieure et qu'il ne faut pas dépasser. D'autre part, la quantité de glace sublimée est fonction de la tension de vapeur dans la couche d'air sus-jacente et cette tension est elle-même fonction de la température.

Nous avons donc été amenés à étudier la quantité de glace sublimable en fonction de la température.

En garnissant le dernier étage du système de réfrigération avec un mélange : air-liquide - acétone, nous avons pu faire varier dans d'importantes proportions, la température de l'intérieur de la chambre de sublimation et suivre les variations de la quantité de glace évaporée en fonction de cette température.

Pour une vitesse du courant d'air de 530 cm / sec. nous

obtenons une courbe $P = f(\theta)$ contenant les points suivants :

Température °C	Masse sublimée $\text{mg cm}^{-2} \text{ h}^{-1}$
- 23,75	3,9
- 19,25	6,3
- 18,5	6,6
- 13,5	11,1
- 12,25	12,6
- 10	15
- 7	17,7
- 6	20,4
- 3,1	26,7
- 2	29,8

Pour les basses températures, il était nécessaire de prendre de minutieuses précautions car, malgré la rapidité des opérations, durant les quelques secondes pendant lesquelles le tiroir se trouvait à l'air, il se chargeait de givre. Nous devions donc, durant le court trajet à parcourir, le maintenir dans une enceinte desséchée pour éviter toute condensation et opérer la pesée le plus rapidement possible .

Malgré toutes les précautions prises, il nous fut impossible, au-dessous de -25°C , d'obtenir la quantité de glace sublimée. Celle-ci était extrêmement faible et au-dessous de -30°C ne devait sûrement pas dépasser 5 milligrammes par heure et par centimètre carré.

Nous avons ainsi fait une série de mesures à V constante et température variable. Nous avons représenté les résultats de la façon suivante :

La courbe tracée en trait plein figure 10 indique la variation de la tension de vapeur de la glace en fonction de la température (échelle des ordonnées à gauche).

Si nous choisissons pour une température arbitraire (-2°C) une échelle de la quantité de glace sublimée par cm^2 et par heure telle que le point représentatif fourni par la mesure se trouve sur la courbe de tension de vapeur, on constate que les autres points expérimentaux se répartissent très convenablement au voisinage immédiat de la courbe.

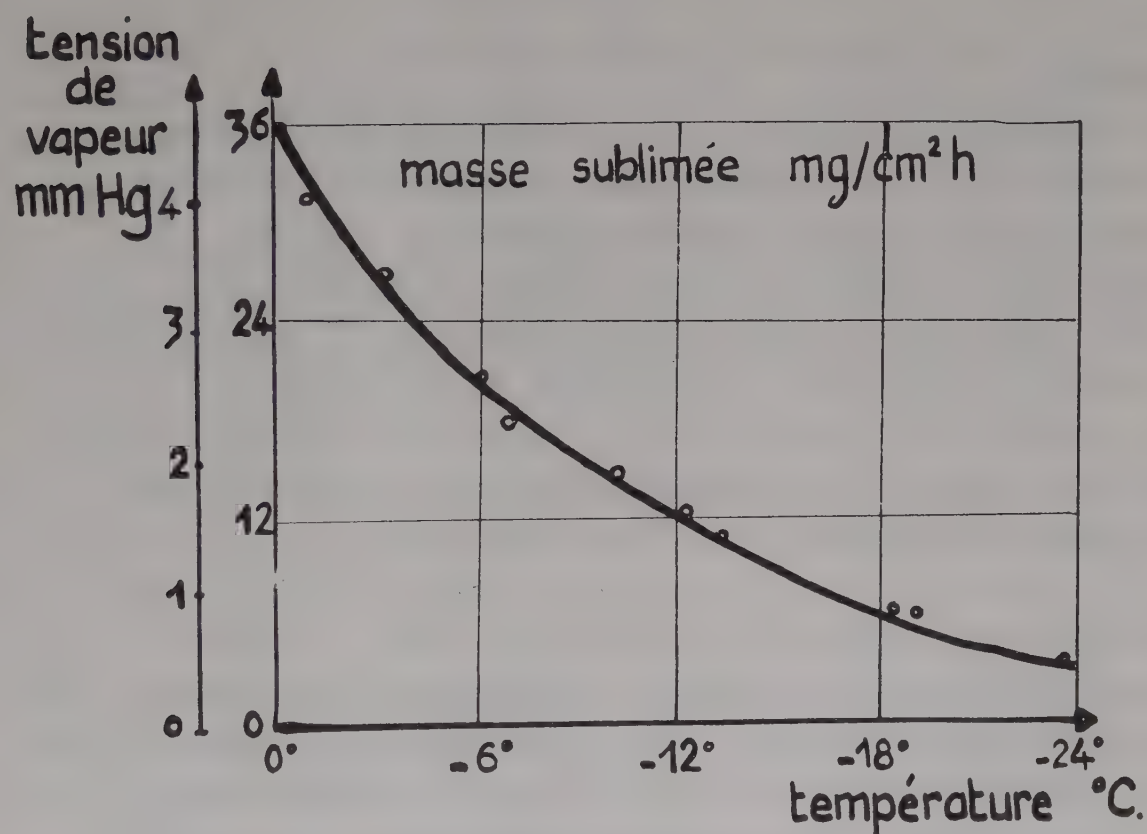


figure 10

Cela montre que la vitesse de sublimation, pour une rapidité constante du courant d'air, est directement proportionnelle à la tension de vapeur. Par suite on peut déduire de la courbe $P = f(V)$ tracée à -2°C , les courbes correspondantes à des températures quelconques.

La légitimité de cette méthode a d'ailleurs été confirmée par le tracé expérimental d'une autre courbe $P = f(\theta)$ pour une vitesse de 67,3 cm/sec non figurée ici.

Nous avons procédé de cette manière pour tracer les courbes en traits interrompus de la figure 9. Elles sont relatives à des températures du courant gazeux d'entrée égales à -20° , -10° , -5° et 0° C.

Conclusion

Du point de vue pratique, on peut déduire de la forme de ces courbes, que si la vitesse de sublimation est d'autant plus grande que la vitesse linéaire des gaz est élevée, on rencontrera, pour réaliser ces très grandes vitesses, des difficultés techniques qui ne seront compensées que par un gain de plus en plus petit de la vitesse de sublimation.

Il existera donc une vitesse optimale qu'il sera facile, à l'aide de ces courbes, de choisir en fonction des résultats demandés et des possibilités de pulsion de l'air.

Notes

I - Le nombre de Reynolds, maintenu constant par le système de cales qui parvient à faire varier la vitesse V en conservant fixe le produit VL , peut être facilement calculé pour l'appareil qui nous a permis l'étude précédente.

Nous avons $Re = \frac{V L \rho}{\mu}$ ou $\frac{V L}{\nu}$ si ν est la viscosité cinématique égale à μ/ρ .

La viscosité de l'air : $\mu = 169$ micropoises donne, si nous adoptons le système CGS

$$\mu = 169 \cdot 10^{-6}$$

D'autre part, nous avons pour masse spécifique de l'air

$$\rho = 1,293 \cdot 10^{-3} \text{ gr.cm}^{-3}$$

Pour le produit VL on a

$$67,3 \times 3 = 357,5 \times 0,565 = 530 \times 0,38$$

$$\text{soit } VL = 202$$

$$\text{d'où } Re = \frac{202 \times 1,293 \cdot 10^{-3}}{169 \cdot 10^{-6}} = 1,54 \cdot 10^3$$

$$\underline{Re = 1540}$$

On est là, encore dans une zone laminaire mais à la limite de l'écoulement turbulent. Cela explique pourquoi nous avons facilement pu passer à ce régime turbulent et avoir ainsi un dédoublement de la courbe.

D'autre part pour V élevé, L devient très faible et une petite aspérité prend une grande importance. Nous retiendrons surtout, de cette estimation de Re, que nous avons pratiquement opéré à la jonction des deux régimes.

II - Tout corps, en s'évaporant, absorbe de l'énergie : c'est la chaleur latente d'évaporation. Cette énergie, il peut la puiser en son sein ou dans le milieu qui l'environne.

Lorsque la glace est isolée par une matière plastique opposant une certaine résistance au passage de la chaleur et est en contact avec l'air, les calories nécessaires à sa sublimation pourront être prises dans le gaz lui-même.

Nous avons, pour trouver la source de ces calories, ajouté à notre appareil deux autres prises de température : l'une à la sortie de la chambre de sublimation, l'autre, qui devait être enlevée quand le tiroir était placé, au centre.

La figure 11 représente la marche d'une telle expérience. L'appareil au repos est à la température ambiante. Lorsque tous les réfrigérants sont en action, l'air se refroidit assez rapidement tandis que la chambre fait inertie et réchauffe encore notablement le gaz qui en sort. Au bout de deux heures la chambre a atteint une température inférieure à 0° C.

On introduit alors le tiroir à glace (a). Si la température d'entrée reste constante, celle de sortie marque un net décrochement qui disparaît au retrait (r) du tiroir .

L'opération peut être répétée plusieurs fois, la constance du décrochement est évidente et est sensiblement de $0,5^{\circ}$.

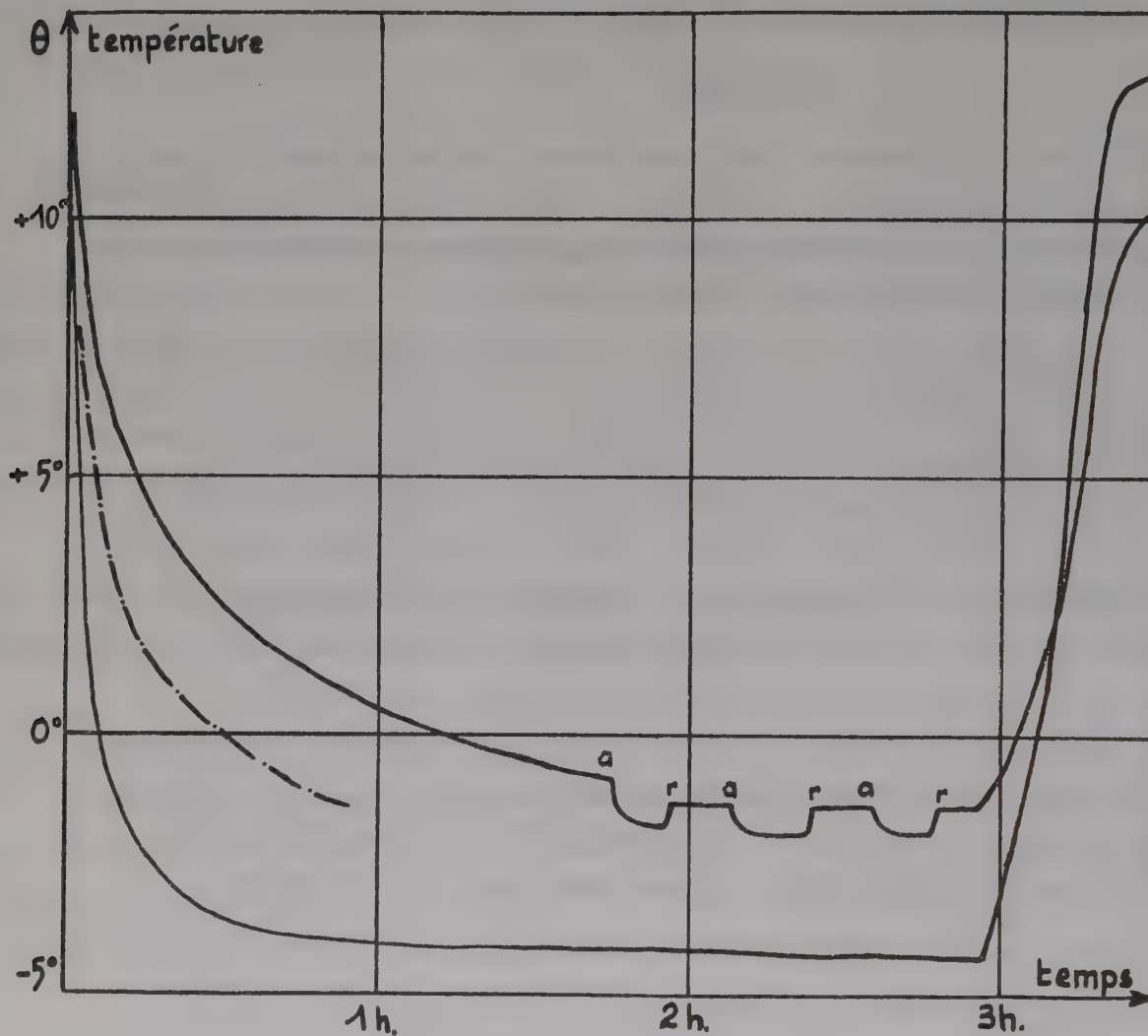


figure 11

Après plusieurs essais on retire les serpentins réfrigérants de leur bain. La température de l'air croît rapidement et dépasse vite celle de la chambre.

Dans la courbe représentée ci-dessus le trait interrompu court et long correspond à la température donnée par le thermomètre placé au centre de la chambre. La courbe la

plus basse est celle de l'air d'entrée et celle marquée a-r-a-r celle de l'air à la sortie.

On peut comparer le nombre de calories perdues par l'air et celui qu'il a été nécessaire à la glace de gagner pour s'évaporer.

La surface du tiroir est de 20 cm^2 . L'expérience, menée hors du cadre des mesures précédentes, notait une évaporation de $33,2 \text{ mg cm}^{-2} \text{ h}^{-1}$ pour un débit d'air de 2 m^3 par heure.

La chaleur spécifique de l'air à pression constante est $C_p = 0,24 \text{ cal / gr. degré}$.

Il passe en une minute 33,3 litres d'air soit 43,2 grammes. Ce gaz fournit donc durant ce temps :

$$0,5^\circ \times 43,2 \times 0,24 = 5,2 \text{ calories}$$

Si la chaleur latente de sublimation de la glace est de 675 cal/gr , ce corps a eu besoin de

$$\frac{33,2 \cdot 10^{-3} \cdot 20 \cdot 675}{60} = 7,46 \text{ calories à la minute}$$

Cette expérience et ce petit calcul montrent que la majorité de la chaleur est fournie par l'air. Une faible partie provient de la glace et surtout des calories introduites, à travers celle-ci, de l'extérieur de l'appareil.

Chapitre IV

ETUDE DE LA SUBLIMATION EN FONCTION DE LA LONGUEUR DE SURFACE LECHEE

Dans le chapitre précédent, nous avons étudié les variations de la quantité de glace sublimée en fonction de la température et de la vitesse du courant d'air qui léchait une surface plane de ce solide.

Afin de faire croître la masse évaporée, nous avons pensé à augmenter la surface de contact. Avant de chercher un procédé destiné à atteindre ce but, nous avons voulu en prouver l'utilité et trouver la relation joignant l'aire balayée et la masse de glace enlevée. Pour cela, conservant le montage précédemment décrit, nous avons fait varier les dimensions du tiroir.

Ayant pour but la détermination de la quantité de glace évaporée au mm^2 selon la position de cette petite parcelle sur l'ensemble de la surface globale de la glace, nous avons procédé à deux études successives, pour une vitesse constante du courant d'air :

- étude de la quantité de glace sublimée selon la position de bandes horizontales perpendiculaires à la direction du courant gazeux ;

- étude de la quantité de glace sublimée selon la position de bandes horizontales mais cette fois parallèles à la direction du courant d'air.

Une synthèse de ces deux études peut fournir la

quantité de glace sublimée à chaque point de la surface.
Une vérification de ces résultats a été obtenue par voie directe.

I - Bandes perpendiculaires à la direction du courant d'air

Nous avons modelé le tiroir en ne laissant au départ qu'une tranchée de 2 mm de large et de 5 cm de long. Nous avons ensuite élargi peu à peu ce fossé jusqu'à atteindre 4 centimètres, la largeur de plage léchée par l'air restant constamment égale à 5 cm. On peut voir la disposition de ces

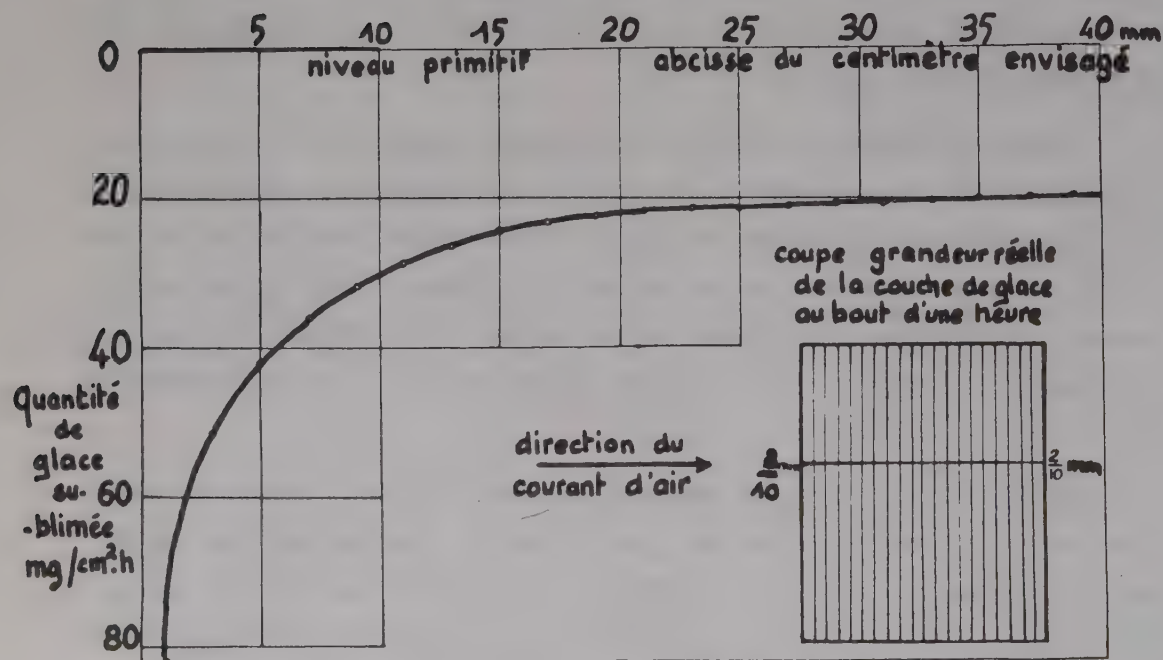


figure 12

bandes par rapport au courant gazeux sur le cartouche de la figure 12.

En remplissant l'espace creusé, d'eau que nous avons mise à congeler et en rectifiant la surface afin que la glace

soit au même niveau que les bords du tiroir, nous avons obtenu une plage unie, de profondeur variable, à soumettre à l'action du vent.

Nous avons ainsi pu tracer la courbe donnant la quantité moyenne de glace sublimée, rapportée en $\text{mg cm}^{-2} \text{ h}^{-1}$ en fonction de l'aire de la surface de glace disposée comme nous venons de le voir. Cette courbe est tracée en trait continu figure 13.

On peut immédiatement remarquer que pour une bande

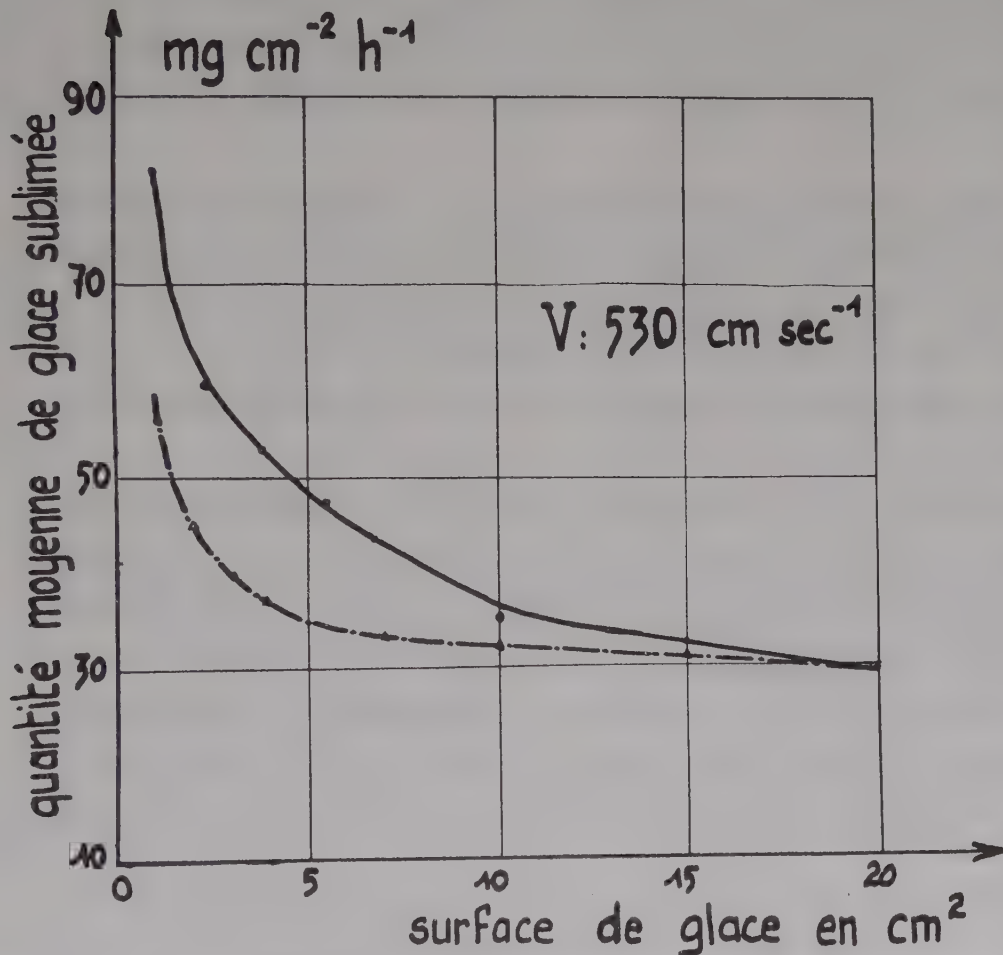


figure 13

extrêmement étroite, la quantité de glace sublimée par cm^2 est notablement supérieure à la moyenne obtenue lorsque la surface atteint 20 cm^2 , donc quand la profondeur de la zone balayée est de 4 centimètres.

Ce phénomène a trois causes essentielles :

- l'air arrive parfaitement sec et à -2° C. sur le bord d'attaque de la surface .
- un bloc de glace se sublime en général très irrégulièrement et tend à diminuer de volume dans toutes les directions.
- les calories apportées par la masse du tiroir facilitent l'évaporation des zones extrêmes.

De ces trois causes, la première semble cependant, de loin, la plus importante. Lors de l'expérience du premier fossé de 2 mm de large, la surface de glace présentait un aspect bombé, le creux étant cependant notablement plus important dans la zone qui entraînait la première en contact avec l'air.

A l'aide de cette courbe on a pu en déduire une autre: celle donnant la quantité moyenne de glace sublimée par bandes de 2 mm de profondeur et disposées les unes derrière les autres comme l'indique le cartouche de la figure 12 .

Pour tracer cette courbe nous avons opéré de la manière suivante :

Déterminons par exemple la quantité de glace évaporée par heure dans la bande située entre le dixième et le douzième millimètre comptés à partir de l'angle d'attaque de la surface donc dans le sixième centimètre carré balayé par l'air :

La courbe en trait continu de la figure 13 donne, pour les cinq premiers centimètres carrés soumis à l'évaporation une quantité moyenne de $48,2 \text{ mg/cm}^2 \cdot \text{h}$ et pour les six premiers $44,9$.

- Masse de glace sublimée dans les 5 premiers cm^2 :
 $48,2 \times 5 = 241,0 \text{ mg / h.}$
- Masse de glace sublimée dans les 6 premiers cm^2 :
 $44,9 \times 6 = 269,4 \text{ mg / h.}$
- Masse de glace sublimée dans le sixième cm^2 :
 $269,4 - 241,0 = 28,4 \text{ mg / h.}$

C'est l'ordonnée, comptée vers le bas, du point de la

courbe 12 dont l'abscisse représente le centre de la sixième bande de un cm^2 et est égale à $(5 \times 2 \text{ mm}) + 1$ soit 11 mm.

Nous avons ainsi opéré pour chaque bande et avons pu tracer la courbe 12.

Il y a lieu cependant, de remarquer que cette courbe ne peut, avec une exactitude absolue, être tracée pour les millimètres extrêmes. En effet, pour les raisons indiquées plus haut, la proximité immédiate des parois du tiroir perturbe la régularité de l'évaporation et ce mode opératoire ne permet pas de déterminer de façon rigoureuse pour la première bande, la seule à être inquiétée par ces perturbations, la proportion de l'évaporation à se produire en avant ou en arrière de la zone.

A part ces deux millimètres initial et final, la courbe 12, représentée avec le système d'axes de la figure, donne le profil moyen de la glace léchée par l'air. La dilatation des ordonnées exagère la dénivellation mais si en une autre figure on donne aux abscisses et aux ordonnées la même échelle, on aura exactement la représentation d'une coupe moyenne de la partie supérieure du bloc de glace.

Hormis le cas de l'influence localisée des parois, une telle courbe nous montre, pour les vingt premiers millimètres, une décroissance très rapide de la sublimation. Ceci peut trouver deux explications :

- l'air arrivant est parfaitement sec. Au premier contact avec la glace, il emmagasine une assez forte proportion d'eau.

- ce faisant, à cause de la chaleur latente de sublimation il se refroidit assez brutalement et la pression de vapeur saturante dans l'air réfrigéré et déjà un peu humide, diminue notablement.

A deux centimètres de l'origine, l'équilibre entre les calories enlevées par la sublimation et celles, venant de l'extérieur et transportées à travers le lit de glace dont le

coefficient de conductibilité thermique est trois fois supérieur à celui de l'eau, est pratiquement réalisé. Au-delà de ces deux centimètres, la sublimation reste sensiblement constante par unité de temps et de surface.

Par un travail ultérieur, utilisant un matériau permettant d'obtenir de très longues surfaces d'évaporation, nous avons pu montrer que ce pallier était très long, de l'ordre du mètre, et allait jusqu'à la saturation totale de l'air.

II - Bandes parallèles à la direction du courant d'air :

Nous avons opéré de la même manière mais en disposant, cette fois, l'étroit fossé initial dans le sens du courant gazeux. L'aspect bombé présenté par la glace contenue dans la première gouttière était symétrique. Nous avons donc supposé que la bande suivante s'intercalerait dans l'espace laissé libre par l'éclatement de la première bande par le milieu. Toutes les nouvelles bandes s'ajouteraient ainsi par le centre.

On obtient de cette façon, la courbe tracée en traits discontinus de la figure 13. On retrouve encore là, une augmentation de la sublimation au voisinage de la paroi causée par :

- l'apport des calories venant de cette paroi
- la présence, sur le bord du tiroir, d'un étroit passage sans glace où l'air pouvait théoriquement rester sec.

On constate ici, une forte évaporation dans les zones situées à moins de deux millimètres de l'extérieur. Si la surface en est éloignée de plus de cinq millimètres, elle reste rigoureusement plane. Ce résultat est d'ailleurs logique le front de l'air est en effet homogène sur la presque totalité de la surface de la glace une fois que sont exclues les portions extrêmes.

La courbe de la figure 14 est issue de celle de la

figure 13 par un processus semblable à celui qui a été employé avec un exemple dans le paragraphe précédent.

Les ordonnées sont volontairement choisies croissantes vers le bas. Cette courbe 14 représente ainsi l'allure d'une coupe de la surface du bloc de glace soumis à l'action d'un vent venant dans le sens de la plus grande dimension des bandes.

Comme pour la figure 12, il faut remarquer que la dilatation des ordonnées exagère l'action de l'évaporation.

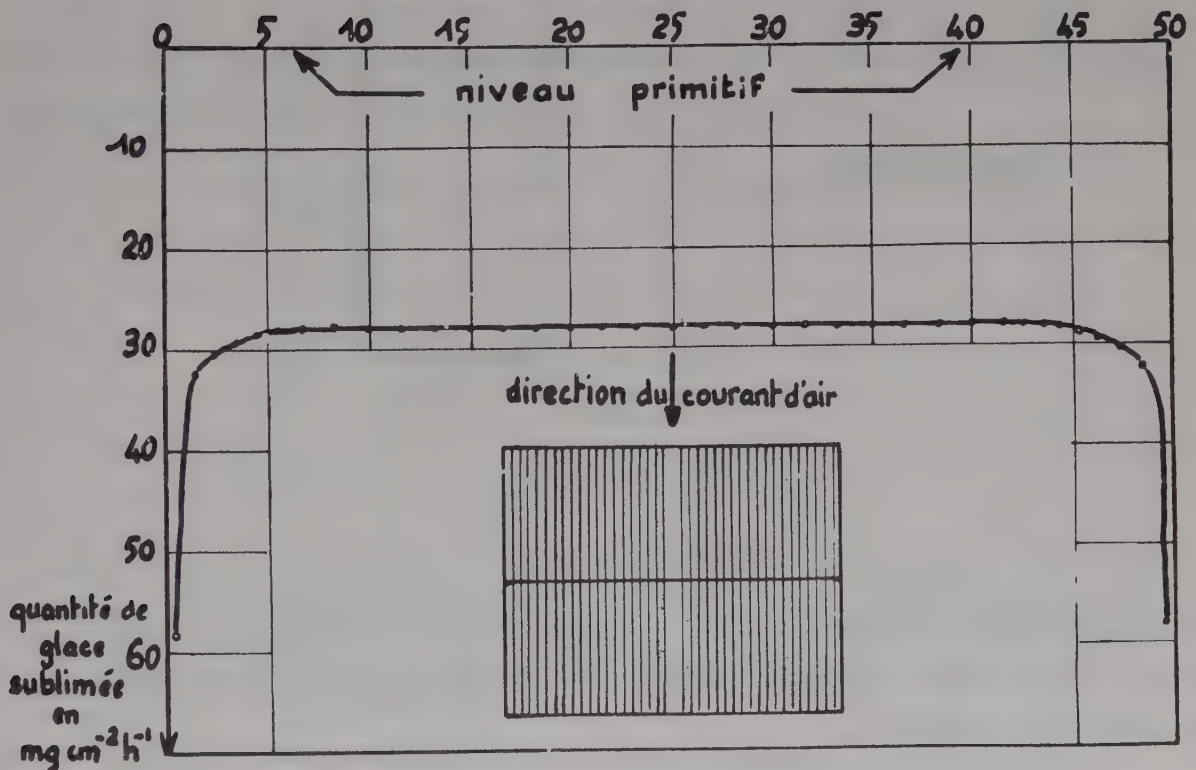


figure 14

On rendrait compte de cette action avec exactitude, en exprimant l'évaporation en millimètres de glace sublimés et en donnant la même échelle métrique aux abscisses et aux ordonnées. C'est ce qui a été fait dans les cartouches des figures 12 et 14.

III - Synthèse

Pour déterminer quelle fraction de l'évaporation peut être attribuée à une portion de la surface, on peut utiliser par exemple, un procédé employé dans l'artillerie pour la pondération et la répartition des coups.

Si l'on a un quadrillage orienté selon des axes parallèle et perpendiculaire au courant gazeux, chaque carreau fait partie de deux bandes respectivement parallèles à chacun de ces axes. Chacune de ces bandes est le siège d'une fraction

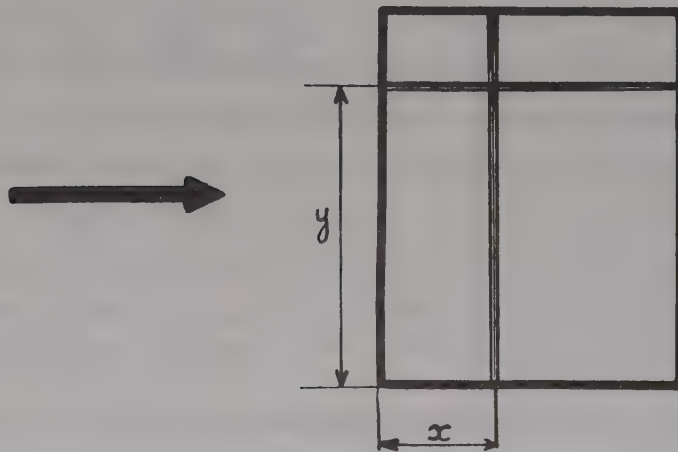


figure 15

de l'évaporation totale et le carreau est à l'origine d'une fraction de la sublimation totale égale au produit des deux fractions des bandes.

Prenons un exemple :

Soit à déterminer l'évaporation produite en un petit carré de un millimètre de côté ayant les coordonnées moyennes suivantes :

$$x = 15 \text{ mm} \quad \text{et} \quad y = 40 \text{ mm} \quad (\text{figure 15})$$

- Evaporation totale obtenue pour 20 cm^2 à 530 cm/sec .

$$29,8 \times 20 = 596 \text{ mg / heure}$$

- Evaporation de la bande de 1 mm de large et parallèle au courant gazeux :

On a $y = 40$ mm .

La figure 14 indique une évaporation de $27,7 \text{ mg} / \text{cm}^2 \cdot \text{h}$.

La bande a une surface de $0,1 \times 4 = 0,4 \text{ cm}^2$.

Cela fait donc une évaporation de $27,7 \times 0,4 = 11,1 \text{ mg/h}$.
soit :

$$\frac{11,1 \times 100}{596} = 1,86 \% \text{ de l'évaporation totale.}$$

- Evaporation de la bande de 1 mm de large et perpendiculaire au courant gazeux :

On a $x = 15$ mm .

La figure 12 indique une évaporation de $24,4 \text{ mg} / \text{cm}^2 \cdot \text{h}$.

La bande ayant une surface totale de $0,5 \text{ cm}^2$ cela fait une évaporation de $12,2 \text{ mg/h}$. ce qui représente :

$$\frac{12,2 \times 100}{596} = 2,05 \% \text{ de l'évaporation totale.}$$

- La parcelle considérée émet donc :

$$\frac{1,86}{100} \times \frac{2,05}{100} \text{ de la vapeur totale soit}$$

$$\frac{3,81}{10\ 000} \times \frac{596}{10\ 000} = 0,227 \text{ mg/h.}$$

Il s'agit d'un chiffre faible bien sûr, mais nous disposons dans toute notre surface de 2 000 petits carrés semblables.

IV - Etude directe

Afin de matérialiser ces courbes 12 et 14, nous avons cherché à représenter de façon directe et dans l'espace, la surface de la glace.

Nous avons, pour cela, pris l'empreinte de cette surface après le passage de l'air durant un temps choisi.

Pour effectuer le moulage de cette surface particulièrement fragile nous avons dû procéder en deux temps :

En un premier temps, aussitôt la sortie du tiroir de l'appareil, nous avons appliqué, sur la glace et le tiroir, une couche mince de pâte à modeler préalablement refroidie mais encore très meuble .

A l'aide de cette première empreinte consolidée, nous avons réalisé un moulage de plâtre qui donne l'aspect exact de la surface de glace.

La comparaison des résultats obtenus par cette méthode directe et des courbes précédemment étudiées montre un excellent accord.

C'est une coupe du bloc de plâtre ainsi obtenu que nous

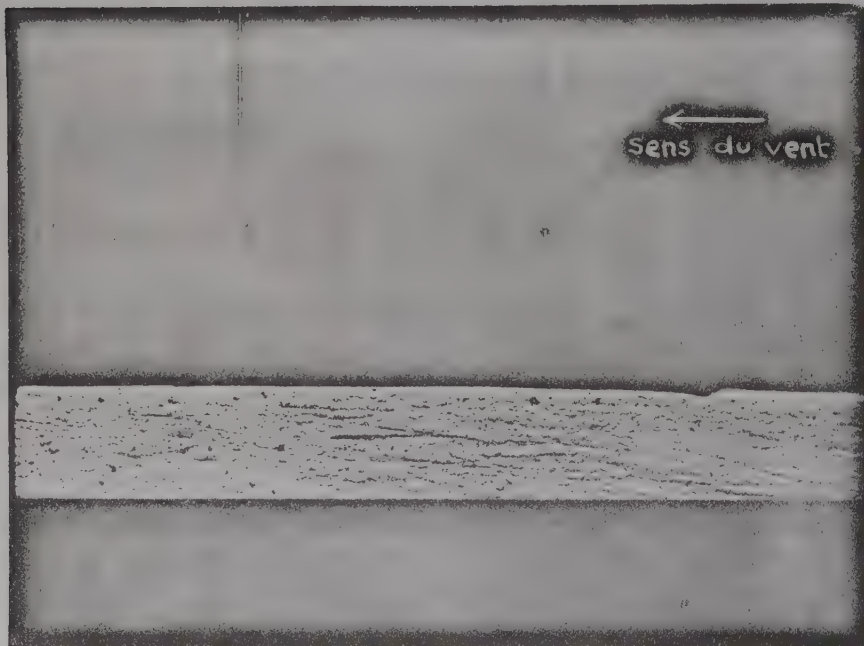


figure 16

avons photographié et que nous présentons sur le cliché 16. Le trait de scie est dans le sens du vent. Les mesures effectuées sur ce bloc, mis à part un léger affaissement sur la partie centrale dû à la fragilité de la couche de pâte à modeler, montrent une très bonne concordance entre les

courbes obtenues avec le fractionnement par zones et la forme de l'empreinte.

Nous recueillons ici le fruit de la décision prise lors d'un chapitre précédent quand nous avons choisi l'incidence rasante . Aucun courant parasite ne venant troubler le flux initial, il est normal d'obtenir un tel accord.

Forts des conclusions tirées de cet ensemble de mesures et d'avoir montré, en particulier, l'existence d'un long palier pendant lequel il y a proportionnalité entre la masse d'eau évaporée et la surface de contact, nous avons pu, afin d'obtenir des rendements élevés , opérer sur de très grandes surfaces en présentant la glace soit concassée, soit sous forme de mousse.

Ces deux façons d'opérer seront comparées dans les chapitres qui suivent, aux résultats actuellement fournis par l'industrie utilisant encore la classique méthode de la lyophilisation sous vide .

Chapitre V

ETUDE DE LA METHODE SOUS VIDE

Avant de vouloir entrer en compétition avec la classique méthode de lyophilisation sous vide, il est nécessaire de constater les performances dont celle-ci est capable. Sans a-priori ni idée préconçue, nous avons donc voulu nous familiariser avec des appareils actuellement en service.

- Machine semi-industrielle

L'un est utilisé pour la dessiccation du plasma sanguin au Centre Régional de Transfusion Sanguine de Nantes. Il peut dessécher 80 flacons de 350 cm^3 de produit congelé.

Il est équipé d'un système de congélation-centrifugation qui fixe le plasma sous forme solide le long des parois du flacon de verre. Ces flacons, bouchés, sont placés, par séries de dix (figure 17), sur des plateaux mobiles autour d'un axe vertical et munis de palettes comme une turbine. De l'alcool à -40°C . asperge les bouteilles et est envoyé sous pression sur ces pales faisant ainsi tourner les flacons. Ce système a l'avantage d'augmenter la surface du produit à lyophiliser : le rapport entre la surface solide présentée par le cylindre creux et la surface libre du liquide avant congélation est voisin de 3.

Le plasma ainsi présenté est stocké, mis en observation puis desséché.

figure 17

Intérieur du
bac de
congélation-
centrifugation

- colonnes d'où
sortent les
jets d'alcool
- supports à
ailettes sur
lesquels sont
placés les
flacons

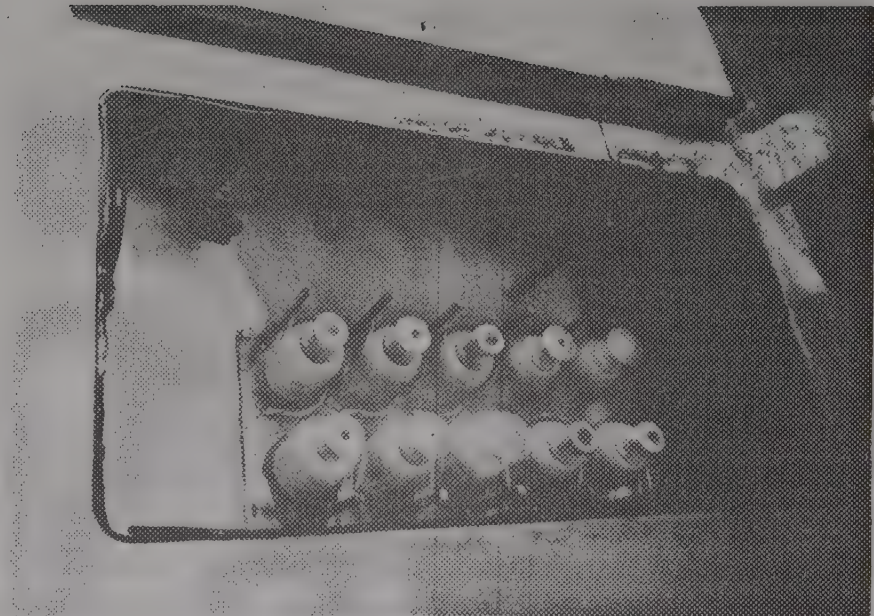


figure 18

puits de
dessiccation

- au centre la
cloison, résis-
tance chauffante
- l'orifice où
l'air est pompé
et spires du
condenseur
- arbres à cames
de blocage des
plateaux sur la
cloison et sonde
de température

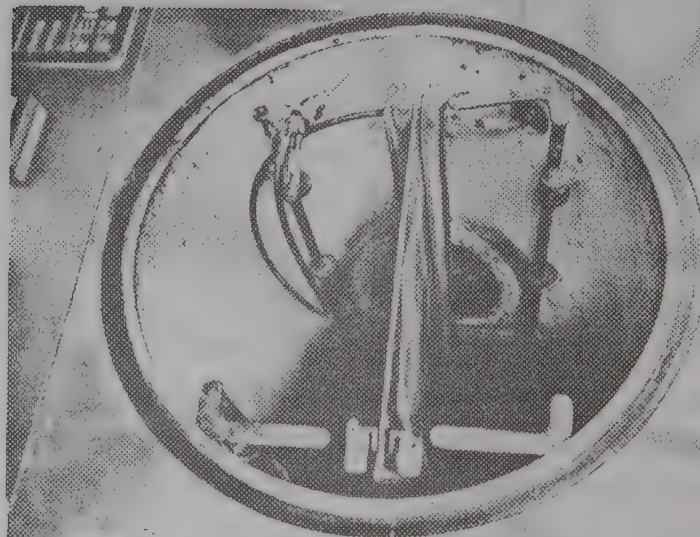


figure 19

le plateau
bloc d'élek-
tron garni
de ses dix
flacons mu-
nis de leurs
filtres
balsorine
N.B. 2 petits
flacons
pilotes

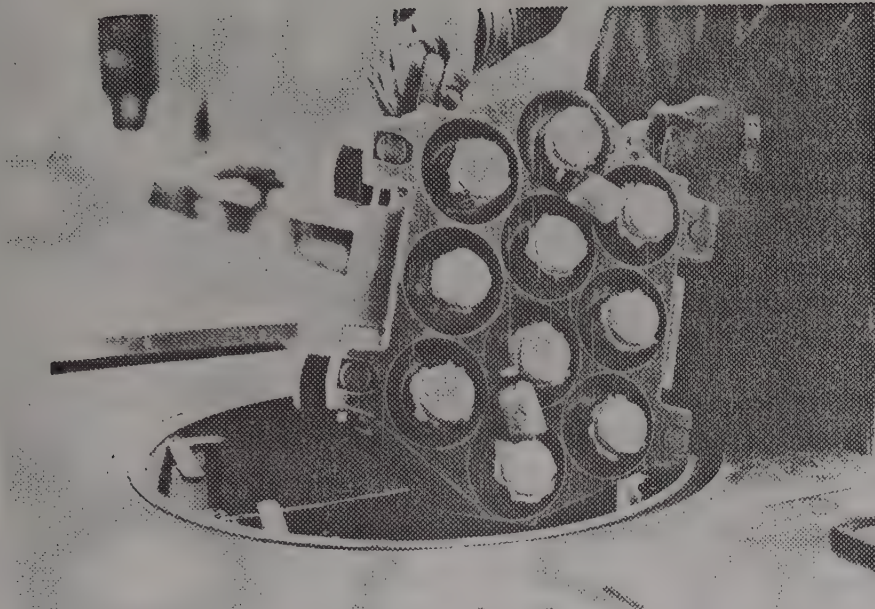
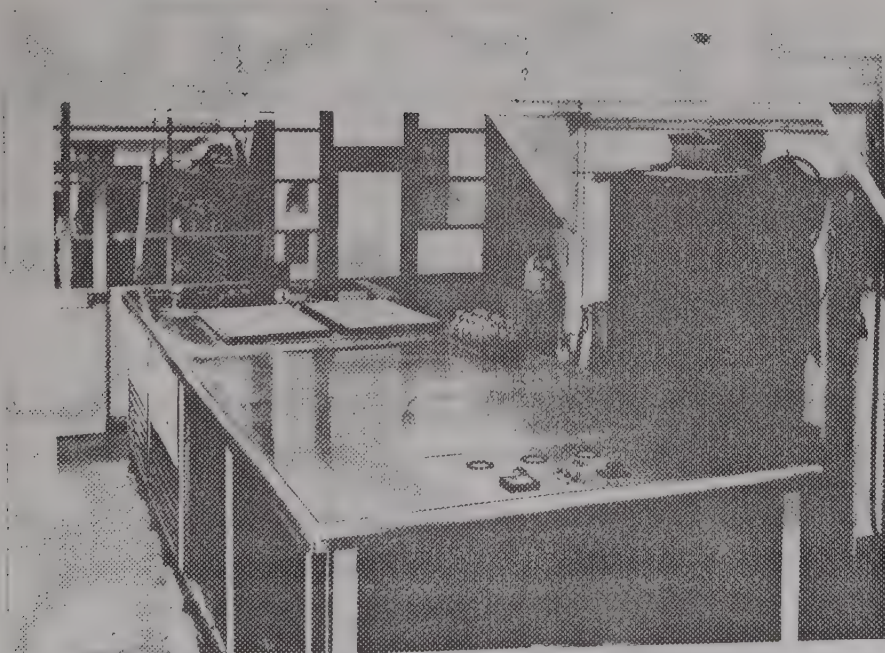


figure 20

Vue générale
- premier plan
partie
productrice
de froid
- au centre
bacs de
congélation
et de
stockage
- au fond :
puits de lyo-
philisation.



Pour la dessiccation, on introduit 80 flacons dans deux puits cylindriques voisins d'un condenseur. Ces cuves sont pourvues d'une plaque chauffante placée selon un plan vertical et diamétral (figure 18). Les bouteilles sont enchassées par groupe de dix dans des blocs en elektron destinés à répartir la chaleur. Elles sont munies de filtres composés de plusieurs épaisseurs de gaze (figure 19)

Une fois les sondes de température placées, les puits sont fermés et l'on fait le vide. Celui-ci s'établit assez rapidement et atteint 0,6 à 0,7 dixième de millimètre de Hg. On attend ainsi une demi-heure ; la température du plasma, alors voisine de -25°C . est nettement inférieure à celle de fusion qui est de -12° . On procède ensuite au chauffage qui doit être mené simultanément avec l'entretien du vide durant 17 heures. Après ce temps, le vide est toujours maintenu mais le chauffage est réglé pour conserver le plasma entre $+40^{\circ}$ et $+45^{\circ}$ durant 14 à 15 heures.

Nous avons reproduit figure 21 les courbes représentatives de la température des plateaux et du plasma et celle du vide en adoptant la présentation utilisée par le personnel qui s'occupe de l'appareil. Ces températures sont fournies par les diverses sondes emboîtées dans les plateaux d'elektron ou placées à l'intérieur d'un flacon.

Cette machine du type Loire (figure 20) ne représente pas le dernier modèle mis au point par cette société qui a encore amélioré notablement les performances de ses appareils mais elle constitue une bonne moyenne et donne des résultats fournissant un ordre de grandeur correct des possibilités offertes par le principe de lyophilisation.

Elle comporte deux pompes à vide à palettes de $27\text{ m}^3/\text{h}$. le système frigorifique et le compresseur correspondant, le bac de stockage, les cuves à vide et le système de centrifugation. Elle mesure 5,15 m de long, 1,71 m de large et 1,10 m de haut, pèse 3,2 tonnes et a coûté 15 millions de francs vers 1953.

Elle peut fournir un flacon de plasma lyophilisé ayant subi toutes les manipulations et les contrôles pour environ 60 francs nouveaux. On sait que le Centre National de la Transfusion Sanguine est un organisme livrant ses produits à prix coûtant.

Le poids de plasma sec contenu dans un flacon de 350 cc est voisin de 33 grammes. On peut donc estimer qu'il a fallu en évaporer 320 cc d'eau. On peut placer 80 flacons dans les

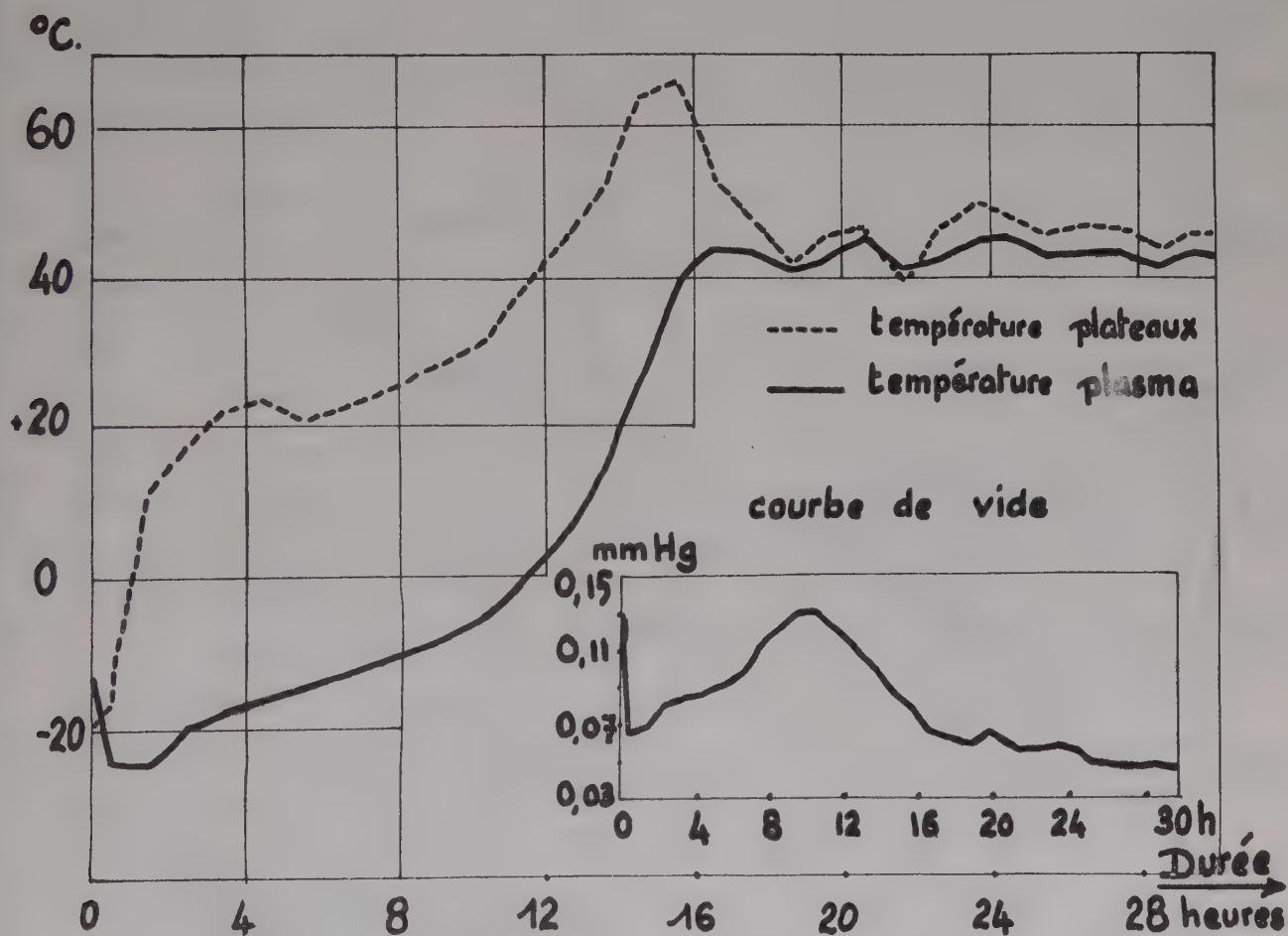
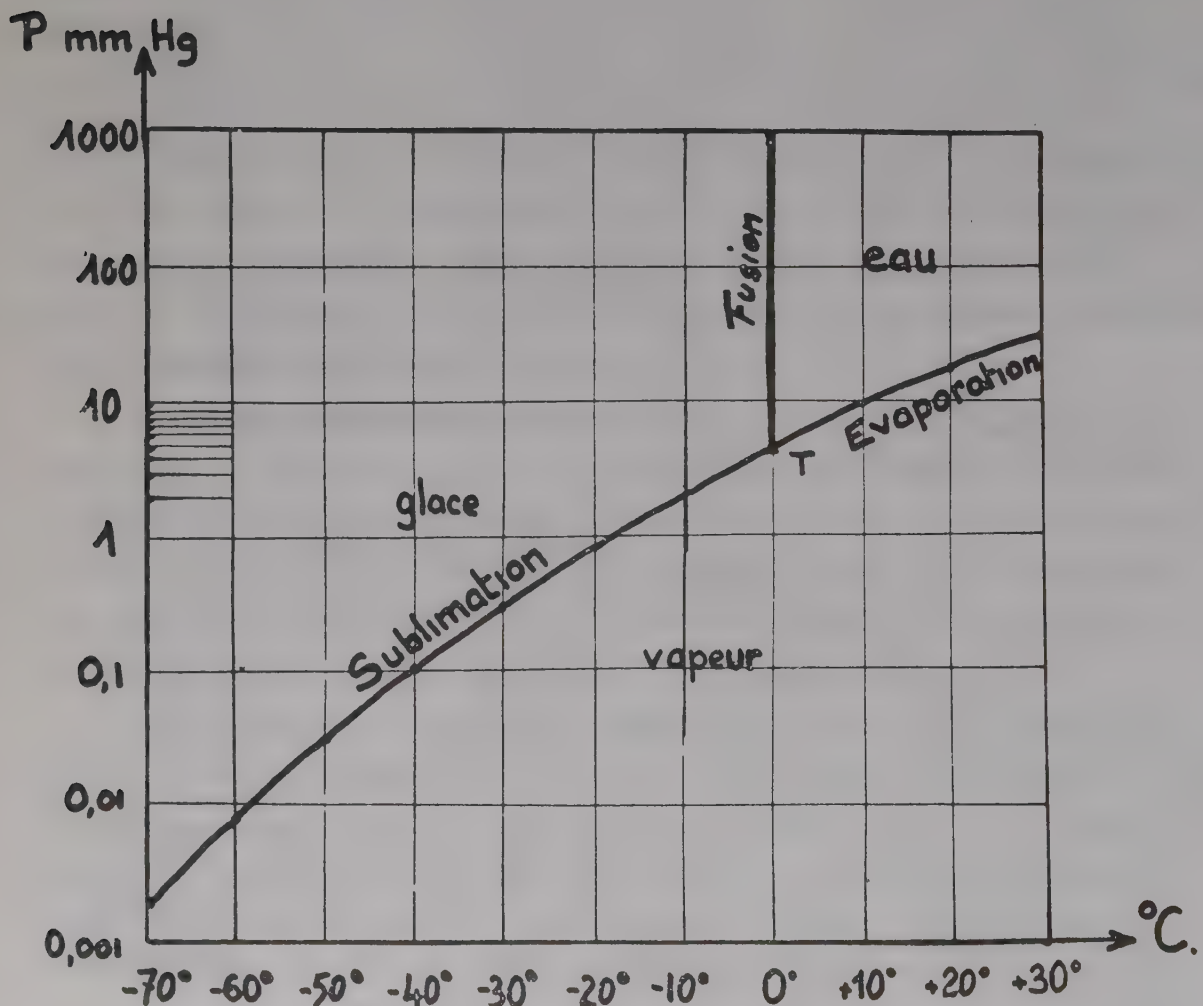


figure 21

cuves, cela fait donc pour une dessiccation, un maximum de 26 Kgs de glace à sublimer.

La sonde de l'appareil indique, pour le corps à dessécher,

0° C. au bout de la douzième heure. La pression à ce moment, encore assez élevée, commence à baisser : l'évaporation vient donc de dépasser son maximum. Bien que la sonde donne 0° C , la température du plasma lui-même est inférieure à cette valeur. La sonde n'a en effet, qu'un contact partiel avec le produit. Le diagramme des phases pour l'eau (figure 22) indique, pour cette pression, une température nettement plus



Point Triple T : + 0,007° C. ; 4,58 mm de Hg

figure 22

faible pour l'équilibre glace-vapeur d'eau.

Supposons seulement, et nous faisons là une généreuse concession au procédé sous vide, qu'en ces 12 heures, toute l'eau soit évaporée. Cela fait 26 Kgs d'eau en une demi-journée. C'est là la possibilité maximale de cette machine. C'est sur cette base que nous établirons les comparaisons et que nous calculerons par la suite, les caractéristiques à donner à un appareil fondé sur le principe que nous cherchons à exploiter. Soulignons encore une fois, que ce nombre de 12 heures est très réduit par rapport à la réalité et que 16 ou 18 heures semblent plus proches de cette dernière, nous conservons cependant ce nombre pour tenir compte du fait que la température est peu élevée dans la toute première partie de l'évaporation.

La surface d'évaporation dans un flacon est voisine de 144 cm^2 . Cela fait, pour les 80 : 11 500 cm^2 . Pour 26 Kgs évaporés en 12 heures, on obtient donc un rendement de 2 170 gr à l'heure ou de 189 $\text{mg cm}^{-2} \text{ h}^{-1}$.

Comme on le voit, l'évaporation au cm^2 est plus forte dans le vide que dans l'air. Le problème résidera donc à augmenter la surface de sublimation en de grandes proportions pour combler ce handicap et atteindre et même dépasser les 2 170 grammes à l'heure.

La pression atmosphérique permet de travailler plus facilement et de présenter, avec moins de difficultés, la substance sous des formes pouvant offrir par unité de masse, une plus grande surface que l'essai, substantiel mais tout de même assez peu efficace, de la centrifugation.

- Machine de laboratoire

Nous avons eu la possibilité, d'autre part, d'utiliser un appareil différent, de la même société et du type laboratoire (figure 23).

Ses performances, très inférieures à celles de l'autre machine, n'ont pas à être ici considérées, mais nous avons pu

chercher comment variait la durée d'une dessiccation en fonction du nombre de flacons qui y étaient entreposés.

Les opérations fort longues, ont toujours dépassé 24 heures. Nous avons pris, toutes les 60 minutes, les températures des plateaux d'elektron et du solide à évaporer. La sonde était toujours dans un flacon contenant 350 cc d'eau distillée et centrifugée comme le plasma durant la congélation.

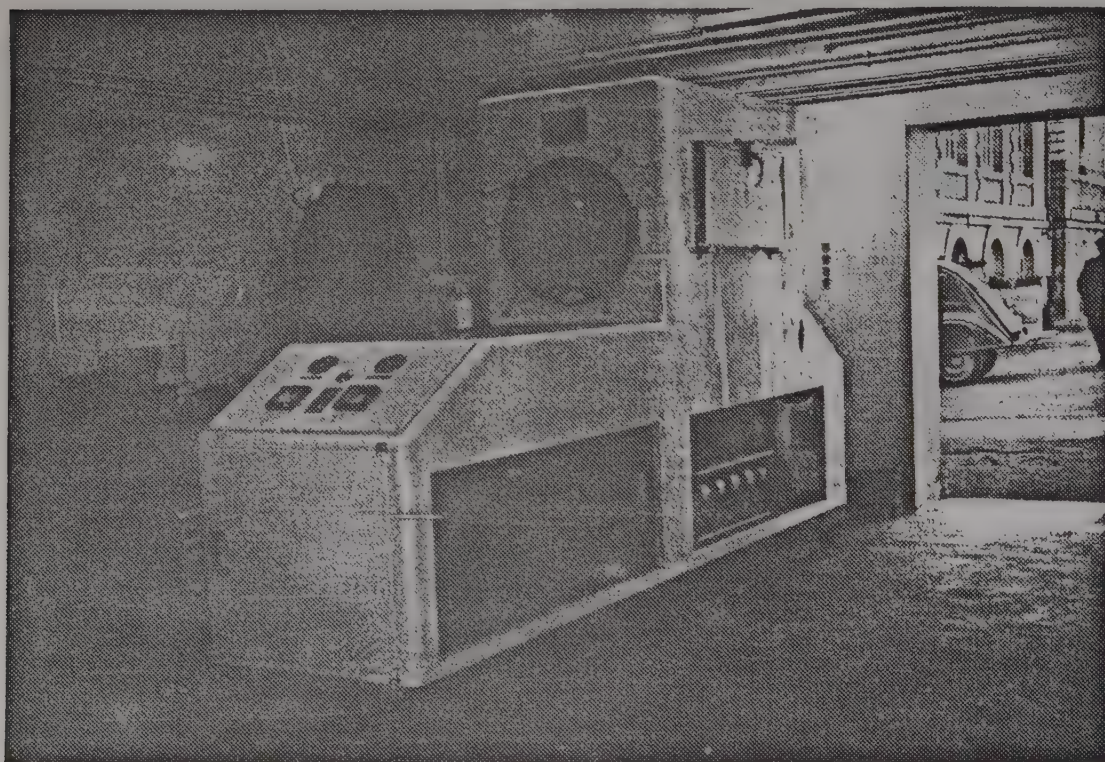


figure 23

Toutes les courbes ont l'aspect de celles de la figure 24 et montrent, au bout d'un temps qui varie avec la charge de l'appareil, une ascension rapide de la température. Ce phénomène se produisant régulièrement à toutes les mesures nous l'avons choisi comme point arbitraire pour comparer les durées des évaporations. Nous avons fait varier la charge de 4 à la contenance maximale : 36 flacons et nous avons obtenu le tableau suivant :

charge	4	8	12	18	27	36
durée	25 h	25 h	28 h	29 h	35 h.	37 1/2

On voit très nettement qu'il serait illusoire, sous le prétexte d'une faible charge, d'attendre une évaporation très courte. La glace, soumise à une sublimation qui se voudrait importante, est alors énergiquement refroidie et n'émet que très peu de vapeur conservant ainsi le vide au-dessus d'elle et rendant le pompage assez inefficace.

La manipulation de ce petit appareil de laboratoire

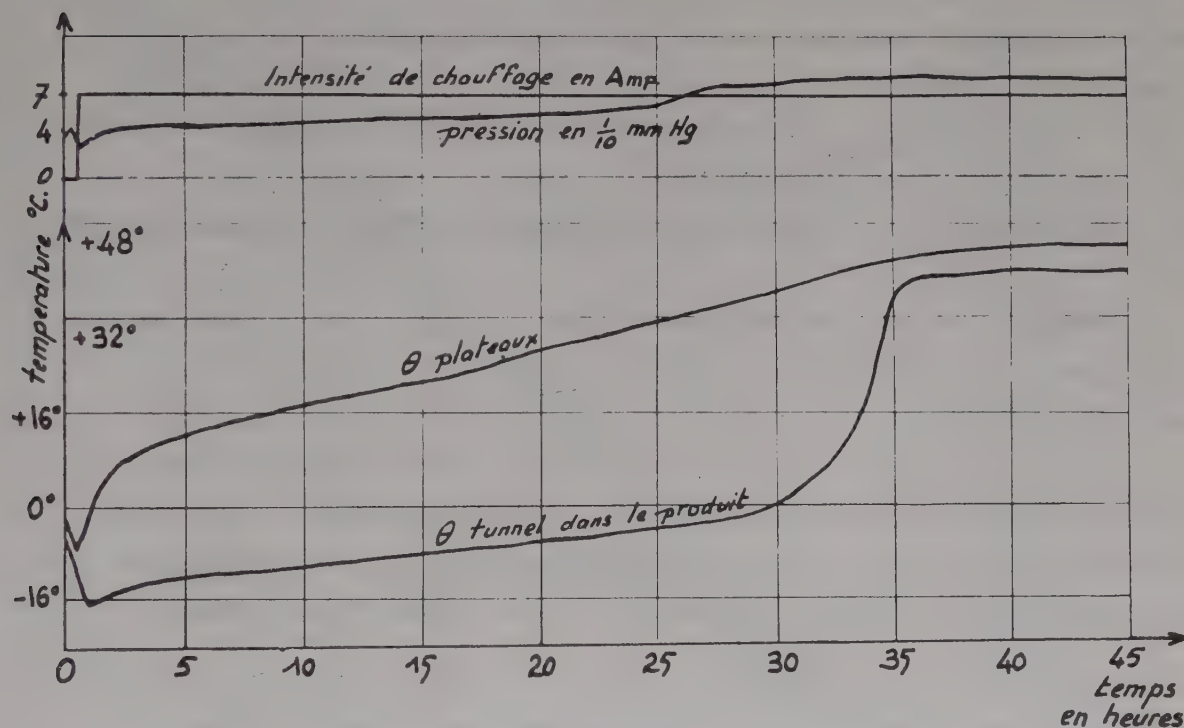


figure 24

nous a en outre permis de faire la remarque suivante : de l'eau, additionnée d'albumine à 5 gr au litre, s'évapore moins rapidement que de l'eau distillée et cette dernière met plus de temps encore que l'eau du service d'eau.

Une fois la glace sublimée, l'albumine se présente blanche, semblable à du coton hydrophile, gardant la forme du congelat initial. Les mailles sont conservées si l'eau est partie. Le produit est immédiatement et totalement soluble lorsque l'on y ajoute du liquide.

Notes :

I - La plus grande rapidité de l'évaporation de l'eau ordinaire peut, en partie, s'expliquer par la présence de gaz dissous qui, sous l'action du vide, s'échappent à travers le solide en créant des canaux très facilement visibles qui augmentent la surface d'évaporation.

La formation de ces canaux n'est d'ailleurs pas l'apanage de la lyophilisation bien que ce procédé semble cependant être celui qui les crée le plus abondamment. Lors de la sublimation de la glace par action d'un courant gazeux on assiste à un phénomène semblable. Le simple fait de laisser fondre à l'air un bloc de glace récemment congelé et présentant, au départ, une parfaite transparence, permet d'observer la formation de ces petits canaux se détachant en blanc dans le bloc solide.

Prenant naissance au sein même de la glace, ces canaux sans changer de diamètre, (parfois ils s'amincissent légèrement en progressant), se fraient un chemin vers la surface à laquelle, avec le temps, ils arrivent et débouchent par un petit cratère. Ce phénomène est lié à l'évaporation : le vide ou un courant d'air accélèrent la formation de ces conduits rendant rapidement opaque le bloc initialement transparent.

La glace n'est pas la seule à être le siège d'un tel phénomène : les blocs de paradichlorobenzène étudiés dans le deuxième chapitre, présentaient, après avoir subi l'action du vent, une surface polie mais percée de très nombreux petits cratères, points d'aboutissement de tels canaux.

Un tel phénomène est probablement à rapprocher de la formation de bulles lors de l'évaporation de l'eau (accélérée par le vide) (38). Avec un solide, la progression est plus lente et laisse une trace : le petit canal.

II - Qu'il nous soit aussi permis d'exposer un aspect qui nous semble paradoxal dans le principe même de la lyophilisation.

Lorsque nous pompons, la pression diminue.
La loi de Mariotte nous indique que, dans ce cas, le volume d'une quantité donnée de vapeur d'eau augmente considérablement. La figure 25 (39) donne une idée du volume que peut occuper à diverses températures et diverses pressions un gramme de vapeur d'eau.

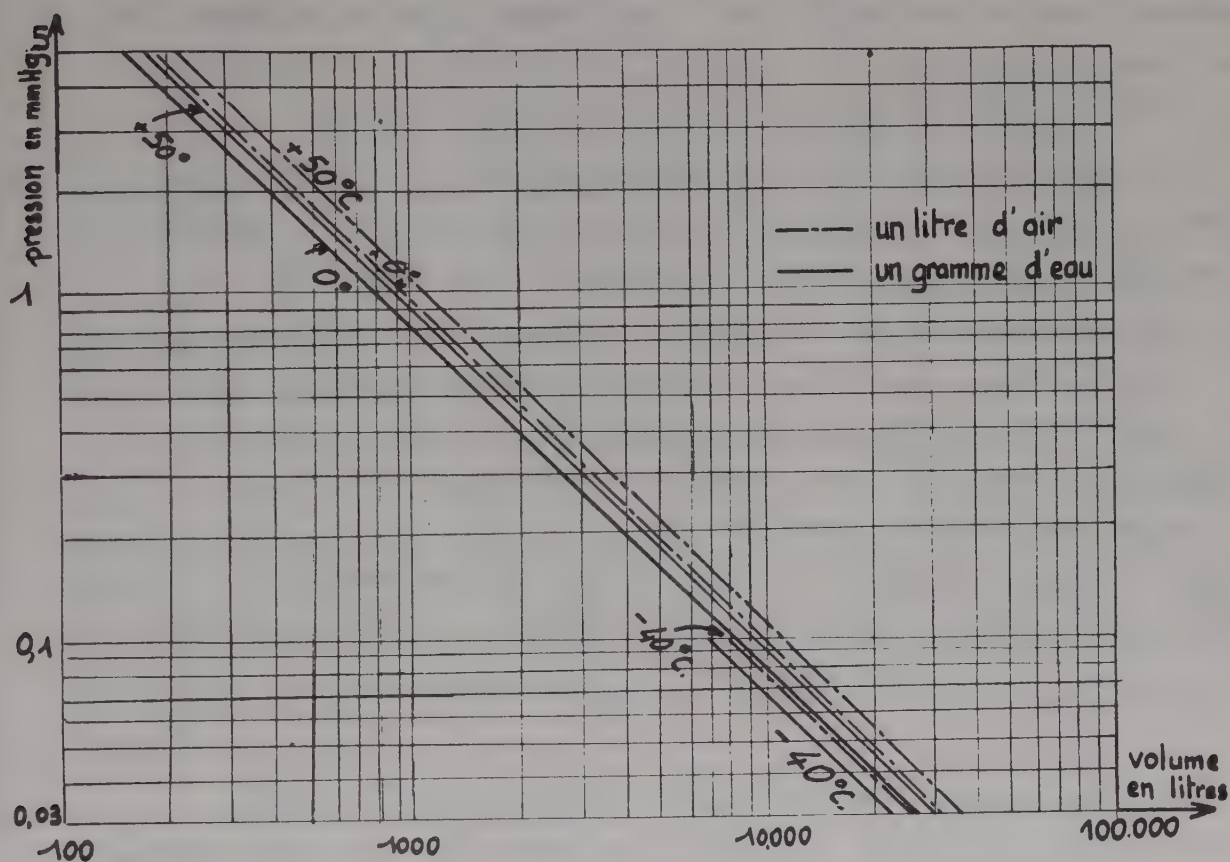


figure 25

Lorsque l'on songe qu'à un vide relativement peu poussé tel que 0,03 mm de mercure, un gramme de vapeur d'eau à 0°C. occupe un volume de plus de 30 m³ on est quelque peu surpris de voir une méthode semblant basée sur le principe suivant : faire le vide, espacer, disséminer dans de gigantesques proportions les molécules, pour aller les pomper ensuite.

A la pression atmosphérique, un gramme de vapeur d'eau occupe moins de 1,3 litre et peut tenir dans 200 litres d'air.

On sait que la glace émet de la vapeur, non pas à 0,03 ni même à 0,1 mm de mercure mais à 3 mm à -5° C. . A l'équilibre cette vapeur occupe donc le même volume dans l'enceinte de lyophilisation que dans l'air. Hélas, on n'atteint précisément jamais cet équilibre : on pompe pour entretenir le vide et les expériences du C.R.T.S. le montrent : l'on garde dans l'enceinte une pression de 0,05 à 0,15 mm de Hg.

La vapeur y est donc diluée et occupe bien effectivement des volumes considérables tandis que les mesures indiquent que l'air sort saturé de la chambre de sublimation.

La comparaison de ces divers volumes : 30 m^3 dans le vide et 200 litres dans l'air suffit, il nous semble, sinon à montrer une contradiction dans la mise en service d'un principe ayant fait ses preuves : l'évaporation sous vide, au moins à donner quelque espoir de succès et de meilleurs résultats avec une méthode qui consisterait à balayer par un courant gazeux, des molécules encore groupées.

Chapitre VI

ETUDE THEORIQUE DE LA SUBLIMATION APRES FRACTIONNEMENT

Parmi les divers procédés utilisables pour augmenter la surface d'un solide, le fractionnement de celui-ci en petites particules semble la méthode la plus simple et est aussi la technique la plus utilisée. Nous avons pensé l'appliquer aux substances congelées et nous avons procédé à une étude théorique de la question.

Si le prix des appareils à fractionner la glace nous a interdit d'effectuer les quelques vérifications expérimentales que nous aurions aimé réaliser, il semble qu'il n'est nullement un obstacle si l'on considère l'emploi intensif qui serait fait d'un tel appareil dans une installation utilisant les résultats plus que satisfaisants issus de ce travail.

Le but même de cette étude est de déterminer le diamètre optimal que devraient posséder des particules congelées pour subir une évaporation maximale en restant en suspension dans un courant d'air froid, sec et ascendant.

- Marche suivie :

Pour atteindre ce but, nous voulons tracer une courbe (figure 29) fournissant la quantité de glace sublimable en un temps donné et pour une masse initiale choisie de glace pulvérisée et exposée, en fonction du diamètre D des particules.

Nous avons déterminé expérimentalement (figure 9 et tableau de la page 51) la courbe donnant la quantité de glace

sublimable par cm^2 et par heure en fonction de la vitesse du courant d'air.

Si nous construisons la courbe (figure 28) indiquant la vitesse du courant d'air pouvant sustenter les particules, en fonction du diamètre D des grains, nous pourrons, en combinant (9) et (28) obtenir (29) si, toutefois, nous admettons ce qui est vérifié au bout d'une très brève période, que la quantité de glace sublimée est proportionnelle à la surface.

- Détermination graphique de la courbe 28 donnant la vitesse que doit avoir un courant d'air pour maintenir en sustentation des particules de glace, en fonction des dimensions de ces grains.

Principe de la résolution graphique d'une équation :

Si l'on dispose de deux équations à trois inconnues x , y et z , on peut résoudre graphiquement le système pour une valeur, choisie arbitrairement, de la troisième inconnue z .

Pour cela, on remplace la troisième inconnue par sa valeur, et, traçant les courbes représentatives du nouveau système de deux équations à deux inconnues, on obtient, à leur intersection, les valeurs des deux inconnues x et y qui correspondent à celle choisie pour la troisième z .

Si l'on choisit un grand nombre de valeurs arbitraires pour z on obtient toute une série de triades de solutions.

A l'aide des points ainsi obtenus, on peut alors tracer une nouvelle courbe donnant les valeurs de x ou de y , solution des deux équations, en fonction de la troisième inconnue z .

Soit une fonction f qui dépend de deux inconnues D et V , telle que l'on ait les relations :

$$f = \varphi (D, V) \quad \text{et} \quad f = \eta (D, V)$$

On a alors un système de deux équations à trois inconnues. On peut ainsi, pour une valeur arbitraire V_1 de V tracer

$$f = \varphi (D, V_1) \quad \text{et} \quad f = \eta (D, V_1)$$

Au point de concours des courbes représentatives on a les valeurs de f et de D correspondant à la valeur V_1 de V . En recommençant l'opération un grand nombre de fois, on aura les valeurs de D , solutions du système, pour les valeurs arbitraires V_1 , V_2 , V_3 ... et l'on pourra tracer la courbe :

$$D = F(V)$$

Application au problème posé :

La vitesse limite de chute d'une particule solide supposée sphérique, dans un fluide est donnée par la loi de Newton :

$$V = \sqrt{\frac{4 (\rho_s - \rho) g D}{3 \rho f}} = A \sqrt{\frac{D}{f}} \quad (21)$$

où ρ est la masse spécifique du fluide. Cette expression est valable pour des particules de forme quelconque si l'on prend pour D leur diamètre sphérique : diamètre d'une sphère qui aurait le même volume.

Dans le cas de particules de glace tombant dans l'air on peut estimer A . On a

$$A = \frac{4 (0,918 - 1,293 \cdot 10^{-3}) \cdot 981}{3 \cdot 1,293 \cdot 10^{-3}}$$

soit environ $A = 960$.

f facteur de friction est introduit par la viscosité et les forces résistantes qu'elle entraîne.

On démontre (40) que toutes les fois où le flot laminaire l'emporte on a, pour des sphères, l'expression :

$$f = 24 \frac{\mu}{D V \rho} = 24 \frac{1}{Re} \quad (22)$$

ce qui peut être exprimé sous forme logarithmique par :

$$\log f = \log 24 - \log Re \quad (23)$$

Quand on trace les variations de $\log f$ en fonction de $\log$ de Re en coordonnées logarithmiques, le facteur de friction dans un courant laminaire suit alors une droite de pente -1. Cette pente se conserve jusqu'à $Re = 3$.

Au-delà, les tourbillons commencent à avoir un certain effet

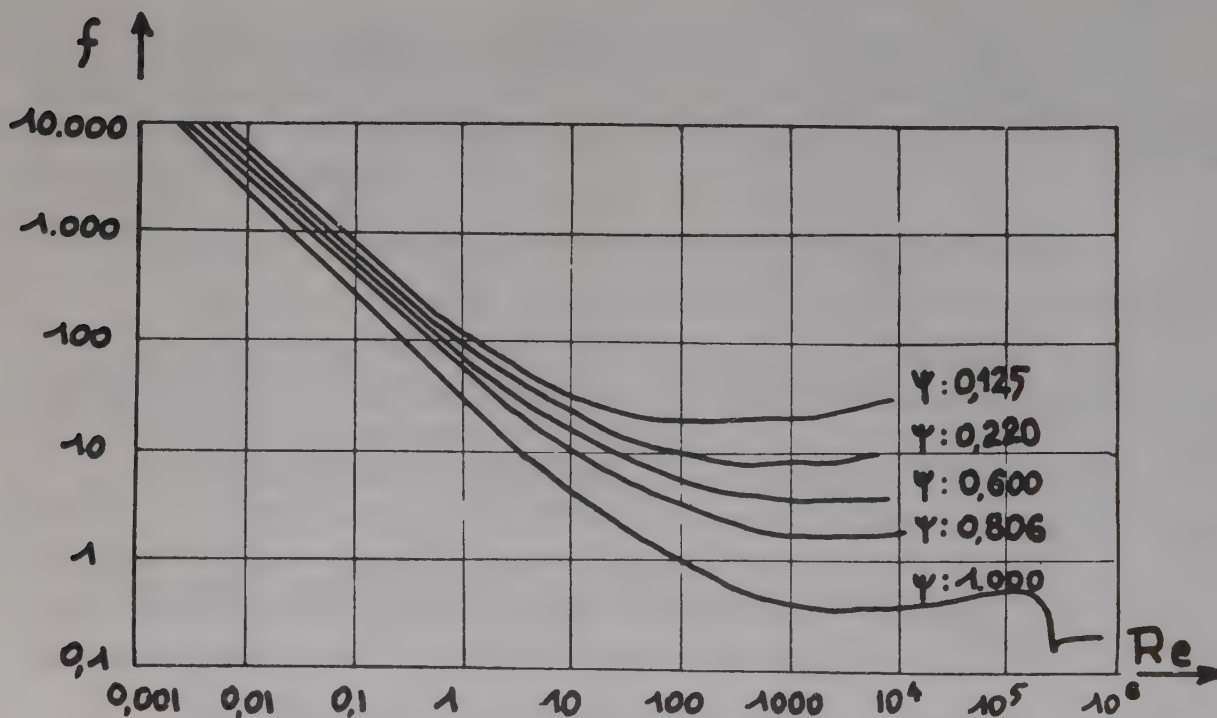


figure 26

qui augmente quand le nombre de Reynolds va croissant. On peut estimer f comme une fonction de Re et le représenter comme le montre la série de courbes de la figure 26 tracées pour des particules de différentes sphéricités.

On appelle sphéricité, le rapport γ entre la surface d'une sphère ayant même volume que la particule et la surface de la particule.

La sphéricité 0,806 correspond à un cube et est voisine de celle de nombreuses autres formes de particules:

octaèdre : 0,847 , prisme a.a.2a : 0,767 , cylindre
 $h=3r$: 0,860 , disque $h=r$: 0,827 . La sphéricité
 $\psi = 1,000$ correspond évidemment à des particules sphériques.
 Nous avons choisi 0,806 pour l'étude qui suit.

La courbe $f = f(Re)$ soit $f = f\left(\frac{D V \rho}{\mu}\right)$ pour
 $\psi = 0,806$ peut être transformée en $f = \varphi(D, V)$ si nous
 faisons le changement de variables $DV = \frac{Re \mu}{\rho}$.

Nous obtenons ainsi l'une des deux équations à trois
 inconnues que nous résoudrons comme il a été indiqué plus haut,
 dans quelques lignes. (courbe C)

L'expression de la loi de Newton $V = A \sqrt{\frac{D}{f}}$ constitue
 la deuxième équation reliant les trois variables D , V et f .

On en tire $f = \frac{A^2}{V^2} D$ soit $f = \eta(D, V)$ dont la
 courbe représentative sera E.

En utilisant la méthode indiquée plus haut dans le cas
 de deux équations à trois inconnues, on pourra, à l'aide des
 courbes C et E tracées pour des V choisis arbitrairement, dé-
 duire la courbe cherchée pour la première étape de notre étude:

$$D = f(V) \quad \text{ou mieux} \quad V = F(D) .$$

Tracé de la courbe C fournissant f en fonction de D et issue
de la courbe expérimentale (26) pour $\psi = 0,806$ par un chan-
gement de variables :

$$\text{La courbe 26 donne } f = \omega(Re) = \omega\left(\frac{D V \rho}{\mu}\right) .$$

Nous désirons $f = \beta(D)$.

$$\text{On sait que l'on a : } D = \frac{Re \cdot \mu}{\rho \cdot V} \quad \text{donc } \log D = \log Re - \log \frac{\rho \cdot V_1}{\mu}$$

Cette expression va nous permettre de remplacer la variable
 Re par D .

Pour $V_1 = 1\ 000\text{ cm / sec}$:

$$\text{Log } D = \text{log Re} - \log \frac{1000 \cdot 1,293 \cdot 10^{-3}}{0,170 \cdot 10^{-3}} = \text{log Re} - \log 7620$$

$$= \text{log Re} - (3,882) \approx \text{log Re} - 4 + 0,118 = \text{log Re} + \bar{4},118$$

Re	0,1	1	10	100	1000	10 000
log Re	- 1	0	1	2	3	4
log D	$\bar{5},118$	$\bar{4},118$	$\bar{3},118$	$\bar{2},118$	$\bar{1},118$	0,118
D	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$1,3 \cdot 10^{-4}$	$1,3 \cdot 10^{-3}$	$1,3 \cdot 10^{-2}$	$1,3 \cdot 10^{-1}$	1,3

Pour procéder au changement de variable :

- on choisit, dans le tableau ci-dessus, une valeur de Re
- on élève sur cette abscisse, sur la figure 26, une perpendiculaire à l'axe des Re
- celle-ci coupe la courbe tracée pour $\psi = 0,806$ en un point dont on lit l'ordonnée sur l'axe des f
- dans un système d'axes D, f il suffit de porter cette valeur de f pour la valeur de D correspondante et trouvée dans le tableau ci-dessus en dessous du Re choisi.

En faisant cette opération pour tous les Re du tableau, on trace la courbe $f = f(D)$ pour $V_1 = 1\ 000\text{ cm/sec}$. C'est la courbe décroissante, la plus basse, en traits interrompus courts et longs, représentée sur la figure 27.

On a représenté sur la page suivante, l'ensemble de tous les tableaux, semblables à celui ci-dessus, et obtenus pour différentes valeurs de V_1 .

V en cm/s	Re	0,1	1	10	100	1000	10000
1000	D cm	$1,31 \cdot 10^{-5}$	$1,31 \cdot 10^{-4}$	$1,31 \cdot 10^{-3}$	$1,31 \cdot 10^{-2}$	00,131	1,31
500	D cm	$2,62 \cdot 10^{-5}$	$2,62 \cdot 10^{-4}$	$2,62 \cdot 10^{-3}$	$2,62 \cdot 10^{-2}$	0,262	2,62
300	D cm	$4,38 \cdot 10^{-5}$	$4,38 \cdot 10^{-4}$	$4,38 \cdot 10^{-3}$	$4,38 \cdot 10^{-2}$	0,438	4,38
200	D cm	$6,57 \cdot 10^{-5}$	$6,57 \cdot 10^{-4}$	$6,57 \cdot 10^{-3}$	$6,57 \cdot 10^{-2}$	0,657	6,57
100	D cm	$1,31 \cdot 10^{-4}$	$1,31 \cdot 10^{-3}$	$1,31 \cdot 10^{-2}$	$1,31 \cdot 10^{-1}$	1,31	13,1
50	D cm	$2,62 \cdot 10^{-4}$	$2,62 \cdot 10^{-3}$	$2,62 \cdot 10^{-2}$	0,262	2,62	26,2
30	D cm	$4,38 \cdot 10^{-4}$	$4,38 \cdot 10^{-3}$	$4,38 \cdot 10^{-2}$	0,438	4,38	43,8
20	D cm	$6,57 \cdot 10^{-4}$	$6,57 \cdot 10^{-3}$	$6,57 \cdot 10^{-2}$	0,657	6,57	65,7
10	D cm	$1,31 \cdot 10^{-3}$	$1,31 \cdot 10^{-2}$	0,131	1,31	13,1	131
5	D cm	$2,62 \cdot 10^{-3}$	$2,62 \cdot 10^{-2}$	0,262	2,62	26,2	262

Les ordonnées f restant les mêmes, mais les abscisses Re étant transformées en D selon le tableau ci-dessus correspondant aux différentes vitesses V choisies arbitrairement, nous obtenons le faisceau de courbes décroissantes de gauche à droite issu de la courbe 26 tracée pour $\psi = 0,806$.

Ce faisceau de courbes C est tracé sur la figure 27 .

Tracé de la courbe E (deuxième équation) théorique, issue de la formule:

$$f = \frac{A^2}{V^2} D$$

Sous forme logarithmique cette expression s'écrit :

$$\log f = 2 \log \frac{960}{V} + \log D$$

Pour $V_1 = 1\ 000\text{ cm / sec.}$:

$$\begin{aligned}\log f &= 2 \log 0,96 + \log D \\ &= 2 (-1 + 0,982) + \log D \\ &= -2 + 1,964 + \log D\end{aligned}$$

$$\text{soit } \log f = \bar{1},964 + \log D$$

D	10^{-3}	10^{-2}	0,1	1	10
log D	-3	-2	-1	0	+1
log f	$\bar{4},964$	$\bar{3},964$	$\bar{2},964$	$\bar{1},964$	0,964
f	$9,2 \cdot 10^{-4}$	$9,2 \cdot 10^{-3}$	$9,2 \cdot 10^{-2}$	0,92	9,2

On peut donc tracer cette courbe $f = \eta(D)$ pour $V = 1\ 000\text{ cm / sec.}$ Elle figure en trait interrompu court et long, en bas à droite du diagramme 27. C'est une droite ascendante de pente +1.

Elle coupe la courbe C : $f = \varphi(D)$ correspondante en $D = 2,2\text{ cm}$ et $f = 2$.

On a donc pour la courbe 28 : $V = F(D)$ la correspondance :

$$V = 1000\text{ cm/sec} \dots D = 2,2\text{ cm.}$$

Comme nous avons fait pour cette vitesse arbitraire, nous pouvons établir le tableau des correspondances entre D et f nous permettant de construire le faisceau de courbes E destinées à couper les courbes C et à donner, à leur point de concours, la valeur de D : diamètre des grains tombant à la vitesse V choisie arbitrairement pour tracer les deux courbes concourantes.

Nous obtenons ainsi le tableau de la page suivante :

V en cm/s	D cm	10^{-3}	10^{-2}	0,1	1	10
1000	f	$9,2 \cdot 10^{-4}$	$9,2 \cdot 10^{-3}$	$9,2 \cdot 10^{-2}$	0,92	9,2
500	f	$3,68 \cdot 10^{-3}$	$3,68 \cdot 10^{-2}$	$3,68 \cdot 10^{-1}$	3,68	36,8
300	f	$1,02 \cdot 10^{-3}$	$1,02 \cdot 10^{-2}$	1,023	10,23	102,3
200	f	$2,31 \cdot 10^{-2}$	$2,31 \cdot 10^{-1}$	2,31	23,1	231
100	f	$9,2 \cdot 10^{-2}$	0,92	9,2	92	920
50	f	0,368	3,68	36,8	368	3680
30	f	1,023	10,23	102,3	1023	10230
20	f	2,31	23,1	231	2310	23100
10	f	9,2	92	920	9200	92000
5	f	36,8	368	3680	36800	368000

Nous obtenons ainsi le faisceau de courbes E , droites ascendantes de la figure 27.

Tracé de la courbe 28 indiquant la vitesse limite de chute des grains, en fonction du diamètre sphérique des particules de glace:

Sur le diagramme 27 nous remarquons deux faisceaux de courbes. Nous avons utilisé la même sorte de trait pour représenter les courbes tracées pour une même vitesse.

Il suffit de relever les points de concours des courbes correspondantes pour obtenir le diagramme 28 :

$$V = F (D)$$

On lit sur la figure 27 :

f	2	1,6	2,05	2,6	5
D en cm	2,2	0,45	0,195	0,113	0,054
V en cm/s	1 000	500	300	200	100

f	10,03	19	32	77	180
D en cm	0,028	0,0183	0,0135	$8,3 \cdot 10^{-3}$	$5,3 \cdot 10^{-3}$
V en cm/s	50	30	20	10	5

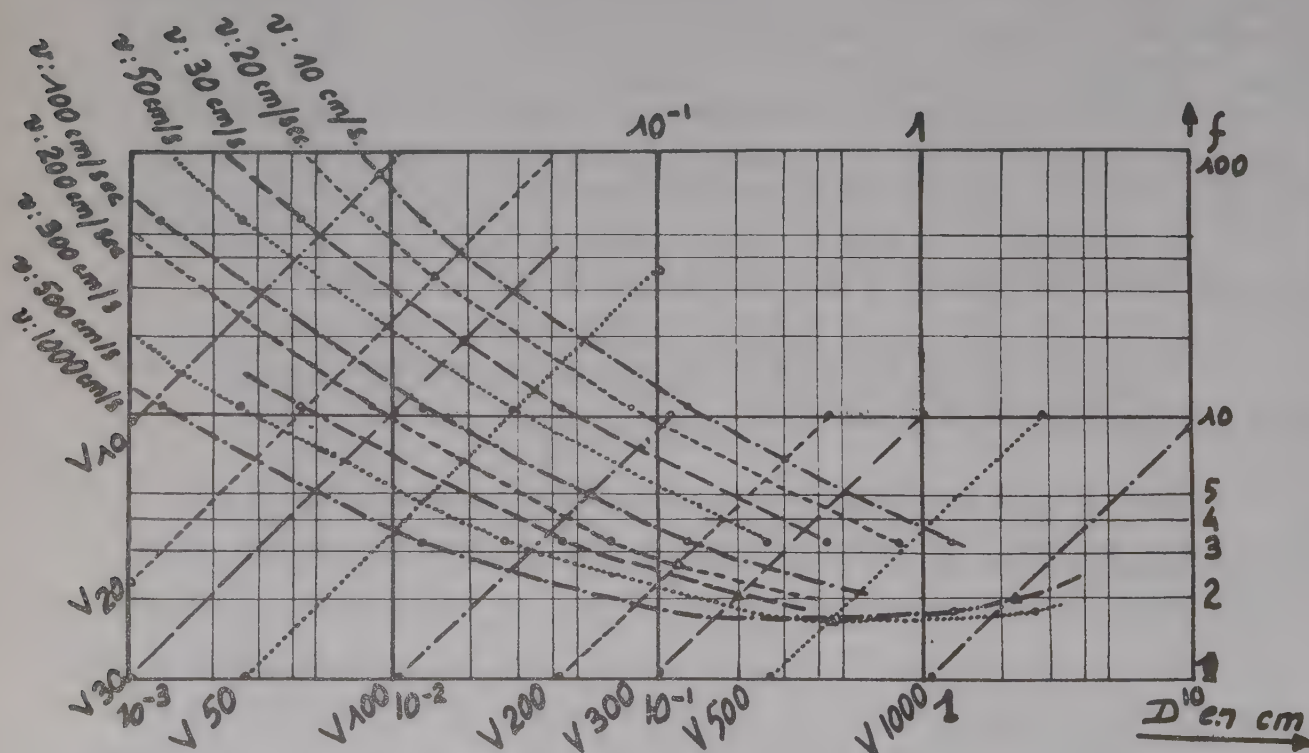


figure 27

Les deux premières lignes des deux tableaux ci-dessus permettent de tracer la courbe 28 que ce paragraphe tendait à déterminer : $V = F(D)$.

Elle donne la vitesse que doit posséder le courant d'air pour que les grains, tombant à leur vitesse limite V , restent sensiblement en suspens dans l'air .

Le problème de la détermination de cette courbe 28 aurait pu être, semble-t-il, résolu de façon mathématique :

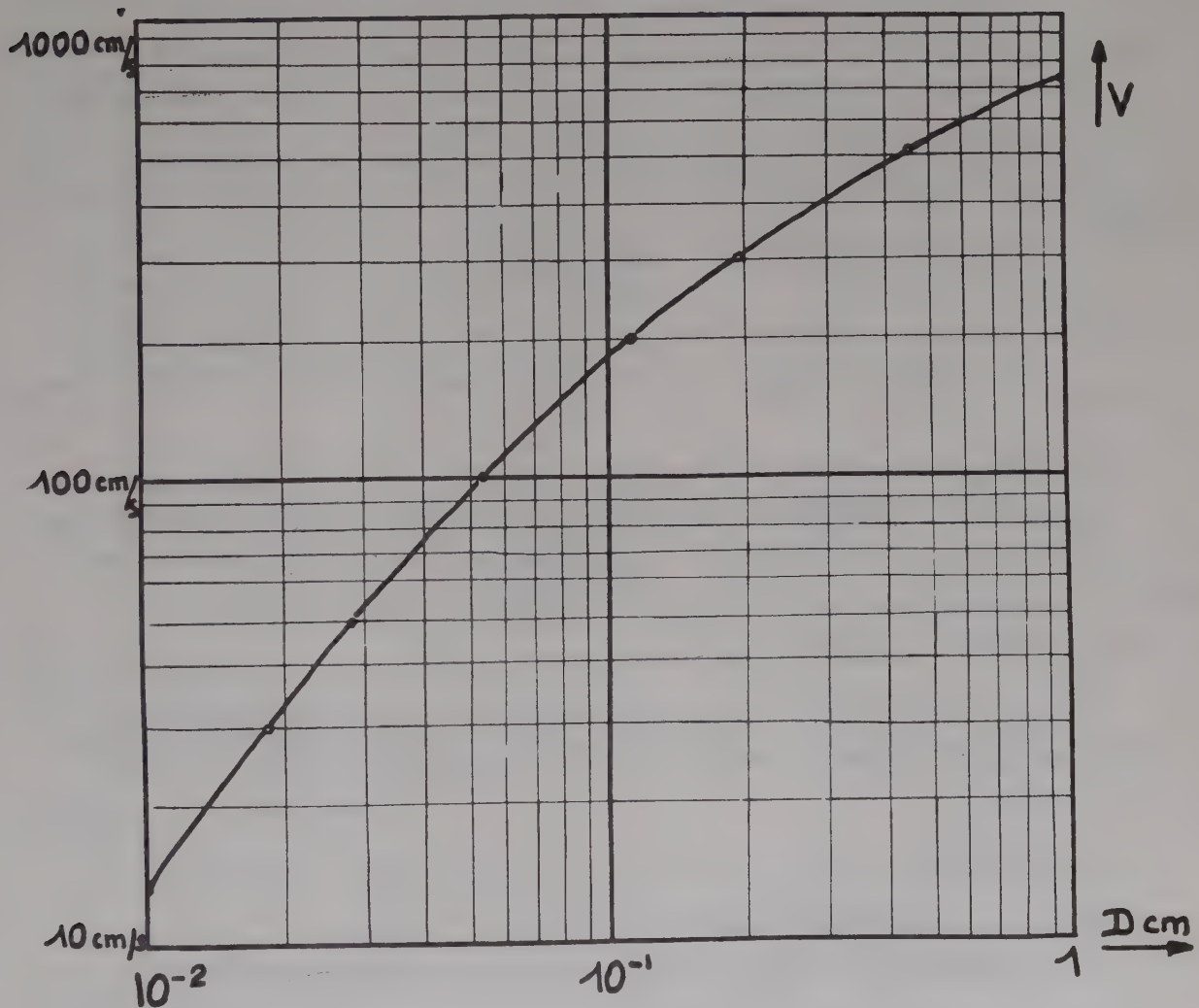


figure 28

- la première relation (21) donnait :

$$V = A \sqrt{\frac{D}{f}} \quad \text{avec } A = 960 \quad \text{soit} \quad V = 960 \sqrt{\frac{D}{f}}$$

$$\text{d'où} \quad f = \frac{D (960)^2}{V^2} \quad (24)$$

- l'autre équation (23) donnait, pour Re inférieur à 3 :

$$\log f = \log 24 - \log \text{Re}$$

$$\text{soit } f = \frac{24}{\frac{DV\rho}{\mu}} = \frac{24}{\frac{D V 1,293 \cdot 10^{-3}}{0,170 \cdot 10^{-3}}} = \frac{24}{D V \frac{1,293}{0,170}}$$

$$\text{d'où } f = \frac{1}{D V} \cdot 3,15 \quad (25)$$

Les deux relations 24 et 25 exprimant f pouvaient s'égaliser

$$f = \frac{D}{V^2} (960)^2 = \frac{1}{D V} \cdot 3,15$$

$$\text{d'où } V = 29 \cdot 10^4 \cdot D^2$$

On peut se demander pourquoi nous nous sommes complu dans la recherche d'une solution graphique, alors qu'une calculée, du type de celle indiquée ci-dessus, aurait été nettement plus courte et plus légère.

La relation (23) n'est valable que pour Re inférieur à 3 . Les correspondances entre Re et D montrent que, pour la courbe 26 , pour :

$V = 1000 \text{ cm/sec}$ on a Re supérieur à 3 pour D supérieur à $4 \cdot 10^{-4} \text{ cm}$

et $V = 10 \text{ cm/sec}$ on a Re supérieur à 3 pour D supérieur à $4 \cdot 10^{-2} \text{ cm}$.

Cette solution mathématique se trouve donc inutilisable, malgré son aspect séduisant, dans l'ordre de grandeur des vitesses et des diamètres ici considérés.

Détermination de la courbe (29) fournissant la quantité de glace sublimable en fonction du diamètre des grains :

La figure 9 nous indique la quantité de glace sublimée par heure et par centimètre carré. Pour les faibles vitesses (inférieures à 60 cm/sec.) il faut extrapoler et pousser les courbes (laminaire et turbulent) jusqu'à l'origine .

Si nous considérons la masse de glace évaporée comme proportionnelle à la surface nous pouvons :

- 1) déterminer, pour un diamètre donné de particules, la surface extérieure d'un poids choisi de glace pulvérisée.
- 2) lire, pour ce diamètre, sur la figure 28, la vitesse correspondante du courant d'air .
- 3) connaissant la surface et la vitesse, en déduire la courbe 29 indiquant la quantité de glace sublimable.

Supposons une particule cubique de diamètre sphérique D. Puisque D est le diamètre d'une sphère qui aurait même volume que le cube, ce volume est égal à $\frac{\pi D^3}{6}$.
L'arête de ce cube se trouve être de D $(\frac{\pi}{6})^{1/3}$, sa surface extérieure de $6 D^2 (\pi/6)^{2/3}$ soit $3,9 D^2$ et sa masse de $\frac{\rho \pi D^3}{6}$.

Si l'on part d'une masse totale de M grammes, on en pourra tirer $6M/\pi D^3 \rho$ particules qui auront une surface totale de :

$$\frac{6 M}{\pi D^3 \rho} \times 3,9 D^2 = 7,45 \frac{M}{\rho D} = S$$

Pour obtenir la quantité totale de glace sublimable il suffira de multiplier cette quantité S par la masse évaporée par cm² et donnée par la courbe 9 .

On obtient ainsi, pour une masse M de départ fixée à 100 grammes :

D cm		$5,3 \cdot 10^{-3}$	$3,6 \cdot 10^{-2}$	$6,8 \cdot 10^{-2}$
vitesse du courant d'air fournie par 28		5 cm/s	67,3 cm/s	126 cm/s
Quantité A de glace sublimée par cm^2 (9)	tur.	1,5	15	19,6
	lam.	0,75	10,1	17,5
Masse de glace sublimable en grammes par h.	tur.	230	338	233
	lam.	115	227	208

D cm	0,26	0,5	1
A en mg par cm^2 (9)	365	530	735
Masse sublimable gr/h	80	48,3	30,8

Dans chaque tableau, la masse sublimable est obtenue en multipliant le nombre de la ligne A par :

$$\frac{7,45 M}{\rho D} \cdot \frac{1}{1000}$$

(le facteur $\frac{1}{1000}$ s'explique par le passage des mg aux gr)

$$\text{soit par } \frac{7,45 \cdot 100}{0,918} \cdot \frac{1}{1000} \cdot \frac{1}{D} = 0,81 \cdot \frac{1}{D}.$$

Pour les trois plus faibles vitesses (tableau supérieur) on remarquera que l'on a distingué les régimes laminaire et turbulent. Seule, la vitesse la moins forte (5 cm/s) a fait l'objet d'une extrapolation.

Les résultats fournis par les deux tableaux représentés ci-dessus permettent de tracer la courbe 29 cherchée dans tout

ce chapitre et fournissant en grammes, la quantité de glace qui sera sublimée en une heure, en partant de 100 grammes concassés en des morceaux de diamètre sphérique D .

Cette courbe conduit aux remarques suivantes :

- 1) Il existe un diamètre optimal voisin de $3/10$ de mm. La décroissance pour les très fines particules provient de la faiblesse de la vitesse du vent nécessaire pour les supporter

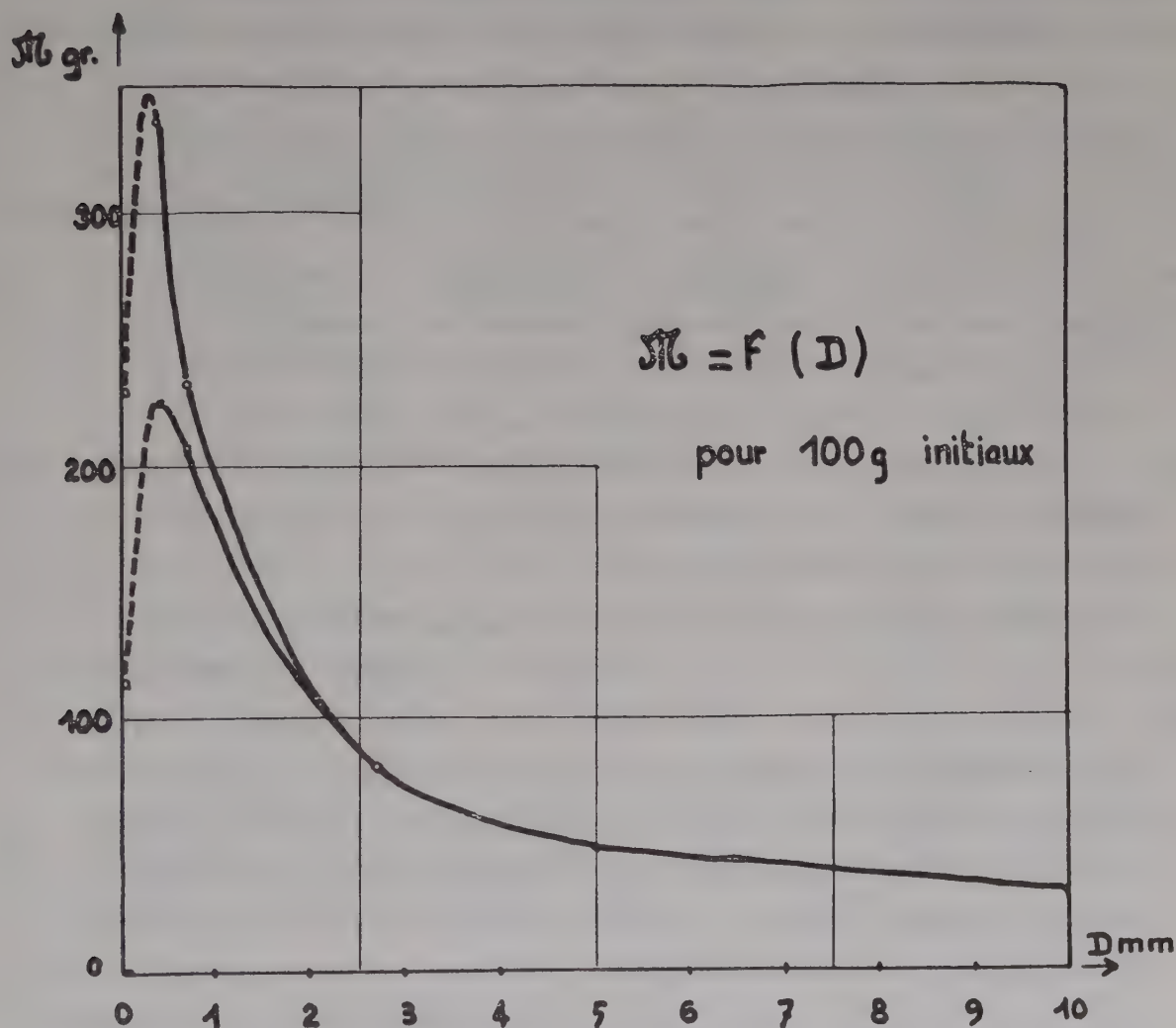


figure 29

et provoquant, par le fait même, une évaporation plus faible que lors des vitesses moyennes.

- 2) Les quantités portées en ordonnées sont toutes théoriques.

Si on les suivait à la lettre, on aurait, en une heure, 200 g. de sublimés pour 100 g. de glace au départ. Il faut lire ici que, quelque soit la quantité de glace initiale, tout serait évaporé en moins d'une demi-heure.

Si l'on maintient à 100 g. la quantité de glace exposée au courant gazeux, il serait nécessaire de la renouveler entièrement toutes les vingt minutes.

- 3) Le calcul théorique, visant à donner un ordre de grandeur des résultats à prévoir, ne tient pas compte de la diminution de la grosseur des grains et des conséquences que cela peut entraîner. Il n'envisage que les particules nouvellement ajoutées et donc à la dimension initiale voulue. Cela laisse entendre que, lors d'une application pratique, il serait indiqué d'utiliser tout le sommet de la courbe et d'alimenter le dispositif en particules, par exemple, d'un millimètre de diamètre. Celles-ci seraient déjà, dès le départ, soumises à une forte évaporation, et, diminuant de volume, s'approcheraient de plus en plus du diamètre optimal pour même finalement, le dépasser, mais encore rester dans une zone à forte sublimation.

Comme nous le verrons plus loin, la vitesse du courant gazeux restera en fait constante. Il faudra seulement prévoir en bas de la colonne, une grille pour soutenir les particules récemment introduites, trop grosses et trop lourdes que l'air ne pourra supporter, et une autre, en haut, pour retenir celles qui sont presque totalement sublimées et qui, trop fines et trop légères, seraient emportées par le courant gazeux.

Comparaison avec la lyophilisation

Nous avons vu que la machine utilisée au Centre Régional de Transfusion Sanguine de Nantes avait un rendement de $189 \text{ mg cm}^{-2} \text{ h}^{-1}$. Une très récente, installée près de l'autre, en 1964, lyophilise dans le même temps une quantité de plasma d'environ 15 % supérieure.

Nous avons pris contact avec des industriels utilisant un appareillage très moderne. Ils obtiennent, avec leur matériel, dans les meilleures conditions, 0,279 gramme par centimètre carré et par heure.

Nous obtenons, en régime laminaire, dans les conditions optimales 220 gr à l'heure et en régime turbulent, plus de 335.

Voyons la surface qui serait nécessaire à ces industriels pour obtenir, dans le même temps un tel résultat :

$$335 : 0,279 = 1\,200 \text{ cm}^2$$

Si, comme nous, ils partent de 100 grammes, il leur faudrait une épaisseur de :

$$\frac{\text{volume}}{\text{surface}} = \frac{\frac{\text{poids}}{\text{densité}}}{\text{surface}} = \frac{\frac{100}{0,918}}{1\,200} = \frac{109}{1\,200} = 0,09 \text{ cm}$$

Soit une couche de moins de 1 mm.

C'est là une épaisseur bien faible, loin des deux centimètres utilisés au prix d'une centrifugation lors de la dessiccation du plasma et très difficile à obtenir dans les appareils de l'industrie.

Si nous abandonnons le principe de la sustentation des particules par l'air en faisant reposer les grains sur une grille métallique, la couche de substance divisée se trouve traversée par le flux d'air froid. Le courant gazeux, passant dans les interstices, empêche les particules de s'agglomérer et expulse d'une façon beaucoup plus énergique que le vide (convection forcée au lieu de convection libre) les molécules de vapeur d'eau dégagées du solide.

On peut encore, dans ce cas, tenter de comparer les résultats que l'on est en droit d'attendre de cette méthode de concassage avec ceux obtenus par la classique lyophilisation.

Prenons un exemple :

Au C.R.T.S. de Nantes, on déssèche à la fois, de 350 cc de plasma congelé présentant chacune, au début de l'opération, une surface d'évaporation de 144 cm^2 .

On peut lire sur les courbes des chapitres précédents qu'à 70 Km/h., un courant d'air demande, pour sublimer en un même temps une telle quantité d'eau, une surface 4 fois supérieure. Il est facile de calculer le diamètre que devraient posséder les grains supposés sphériques, pour obtenir un tel résultat.

Si N est le nombre de grains de diamètre d que l'on peut tirer de ce volume on a :

- Volume total des grains : $V = N \frac{\pi d^3}{6}$ (volume égal à 80×350)

- Surface totale des grains : $S = N \pi d^2$ (4 fois celle du plasma
 $80 \times 144 \times 4$)

de ces deux expressions on peut extraire d , on a

$$\frac{V}{S} = \frac{d}{6} \text{ soit } d = \frac{6 V}{S} = \frac{6 \times 80 \times 350}{4 \times 80 \times 144} = 3,65 \text{ cm}$$

Avec des grains de 3,65 cm de diamètre nous obtenons une surface permettant un rendement concurrentiel à celui de la machine à vide.

On est encore très loin des $3/10^0$ mm : diamètre optimal de la méthode de concassage avec sustentation par l'air.

Si le rendement est équivalent à celui de la lyophilisation avec 3,65 cm de diamètre, de combien doit-il lui être supérieur quand on diminue encore cette dimension.

Quand on envisage la machine très récente fournissant $0,279 \text{ gr/cm}^2 \cdot \text{h}$ au lieu des 189 mg donnés par celle du C.R.T.S. , si l'on conserve pour le vide, le même volume exposé et la même surface obtenue après centrifugation, il faut , quand on passe à l'action du courant gazeux, multiplier cette aire non plus par 4 mais par 6 . (A 70 Km/h l'air sublime

50 mg/cm² . h . En multipliant la surface par 6 on atteint 0,300 gr/h comparable à 0,279)

$$\text{On a alors : } \frac{V}{S} = \frac{d}{6} = \frac{350}{144 \times 6} \quad \text{d'où } d = \frac{350}{144} = 2,4 \text{ cm}$$

Un concassage très peu poussé conduit donc à des résultats équivalents à la meilleure méthode sous vide.

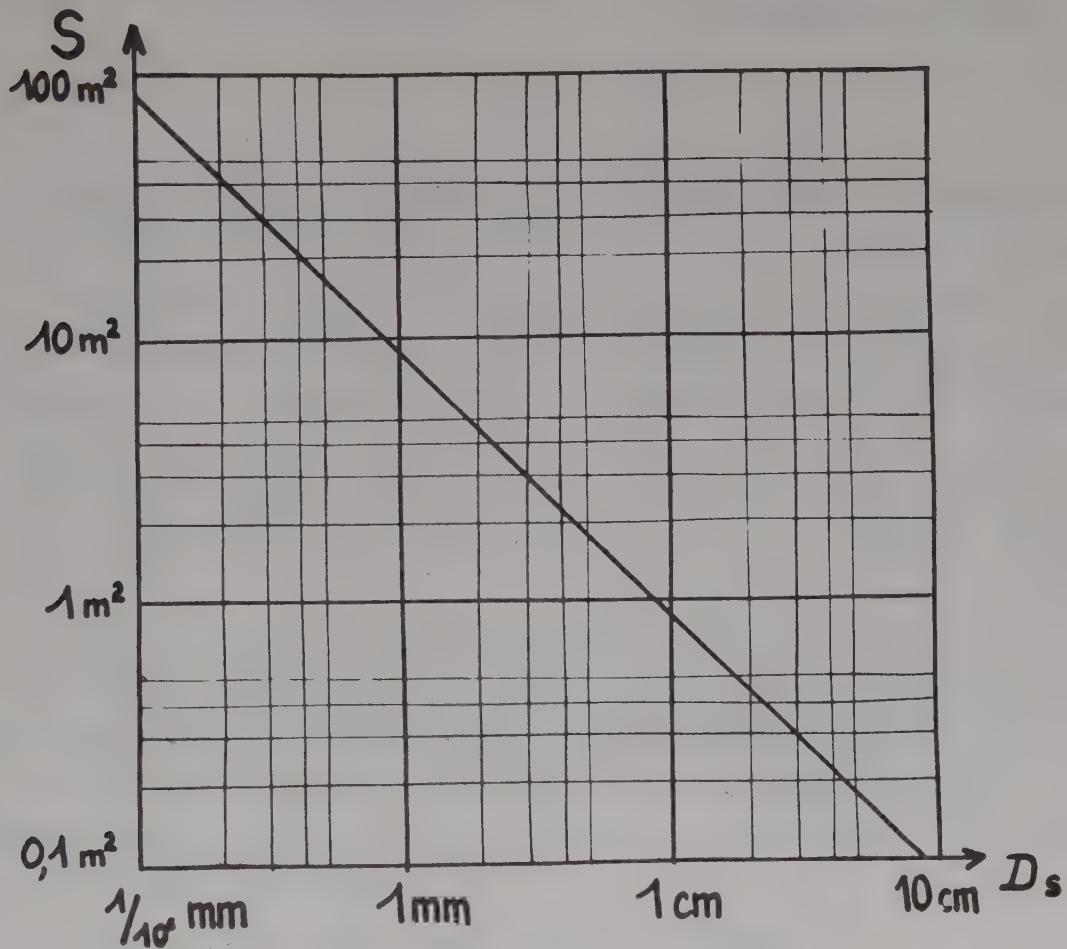


figure 30

La réalisation d'une colonne contenant 26 kgs de solution congelée sous forme de grains de diamètre moyen voisin de 2 à 3 cm et dans laquelle la vitesse linéaire de l'air serait de 70 Km/h semble se prêter à une réalisation moins onéreuse qu'un appareil sous vide du type "Loire".

Si l'on désire avoir une idée de la variation de la surface en fonction du diamètre des particules, il est facile, en utilisant l'expression obtenue dans l'étude théorique de la sublimation après fractionnement, d'obtenir la courbe fournissant la surface S des grains, en fonction de leur diamètre sphérique D_s .

On a l'expression :

$$S = 7,45 \frac{M}{\rho D_s}$$

ce qui donne, si l'on part d'un kilogramme de glace I pour laquelle $\rho = 0,9$:

$$S \text{ cm}^2 = \frac{7,45 \times 1\,000}{0,9 \times D_s} = \frac{8277}{D_s \text{ cm}}$$

On obtient le diagramme 30 tracé pour des diamètres qu'il est possible d'espérer après concassage, broyage grattage ou pulvérisation.

On peut alors apprécier les surfaces importantes qui peuvent être obtenues avec un traitement mécanique encore assez sommaire et l'augmentation de l'évaporation qui peut en résulter.

Chapitre VII

CRYODESSICATION DE MOUSSE CONGELEE DANS UN COURANT GAZEUX

Nous avons montré les espoirs que permet l'évaporation d'une substance concassée ou broyée.

Toujours dans le but de faire croître la surface et donc le rendement, nous avons pensé pulvériser, au moyen d'un vaporisateur, la substance liquide dans une enceinte fortement réfrigérée : le brouillard formé se solidifierait et présenterait, une fois encore, une très grande surface pour un faible poids. Faute de matériel suffisant cette voie dut être abandonnée.

Nous avons alors orienté nos recherches vers la fabrication de bulles. En soufflant de l'air froid à travers un liquide placé en un lieu à très basse température nous arrivons à congeler le liquide mais les paillettes, aussitôt formées, s'agglutinent et se ressoudent sans donner une surface sensiblement agrandie.

Il faut maintenir les bulles au repos.

Pour cela nous avons, à travers un verre fritté de porosité n°3, soufflé de l'air à travers l'eau très légèrement additionnée d'un agent moussant non toxique : de l'alumine. Celui-ci maintient l'écume formée, au repos, le temps qu'elle se congèle et nous avons ainsi obtenu une mousse formée d'un nombre très grand de fines bulles et présentant, pour un faible poids une surface fort élevée.

Cette mousse de glace extra-légère, de densité voisine de 0,08 est rigide et supporte facilement d'être entassée sur une certaine hauteur. Il faut compter 7 minutes pour en solidifier à une température de -25°C une épaisseur de 5 cm. Elle nécessite, étant donnée sa légèreté, la présence d'une grille supérieure afin d'éviter qu'elle soit emportée par le courant gazeux.

C'est sur ce matériau que nous avons cherché à améliorer les résultats déjà obtenus avec la sublimation d'une surface plane de glace.

Le problème consistait donc à souffler de l'air froid à travers une quantité donnée de glace congelée et à mesurer la masse de glace sublimée en un temps donné.

Description de l'appareil

Nous avons été amené à construire l'appareil schématisé figure 31 .

L'air atmosphérique, aspiré par la pompe située en fin de circuit traverse successivement les organes suivants :

- deux tubes desséchants garnis de gel de silice et montés en parallèle. Ils sont utilisés le plus souvent alternativement mais peuvent aussi l'être simultanément.
- deux réfrigérants à eau, en série, pour permettre à l'air de perdre les quelques calories qu'a dégagé sa dessiccation.
- un serpentin plongé dans de la glace
- un tube desséchant au silicagel ultramicroporeux indicateur.
- un autre serpentin de cuivre plongé dans une saumure de KCl et d'eau vers -10°C .
- un dernier tube desséchant de sécurité et de contrôle.

Cet ensemble refroidisseur-desséchant relativement

complexe a, du moins, l'avantage de fournir un air sec à une température constamment voisine de -1°C .

- cet air arrive alors à la base d'une colonne C de section variable, soigneusement calorifugée. Dans cette colonne sont placées deux grilles entre lesquelles sera disposée la mousse de glace et un thermomètre pour vérifier la température.

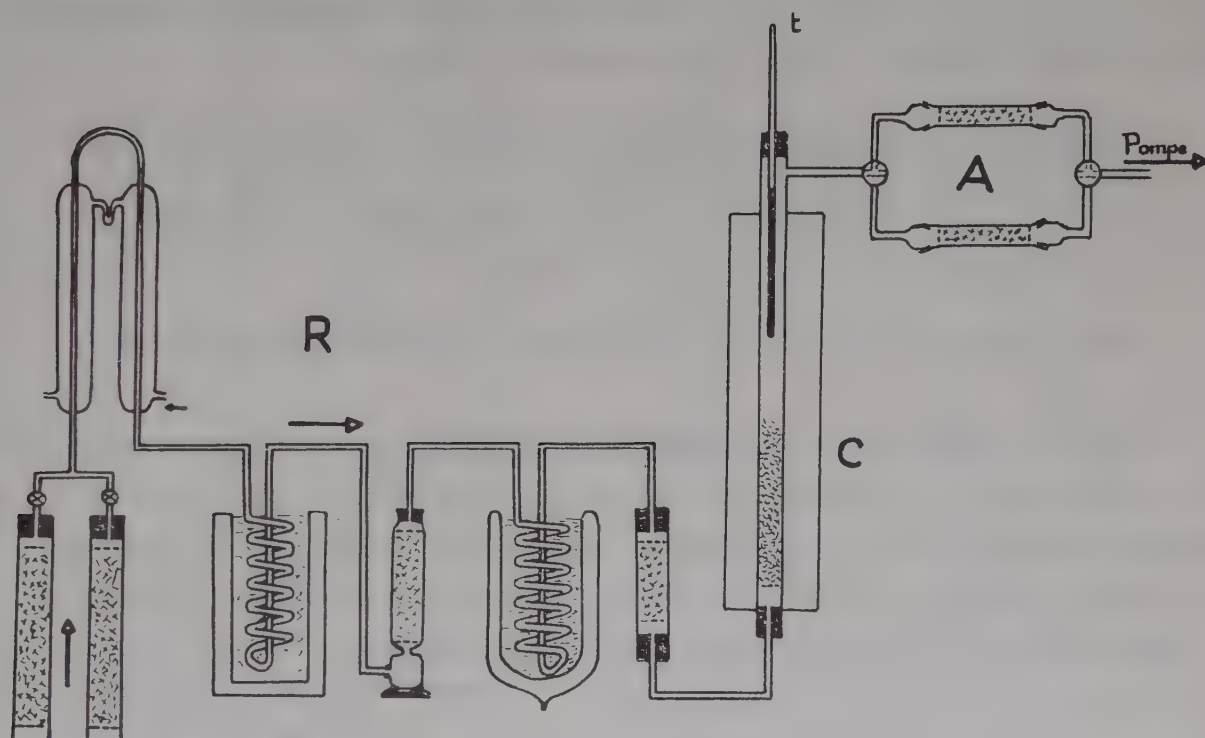


figure 31

- à la sortie supérieure, l'air doit se décharger de l'humidité prise dans la colonne, en passant à travers deux tampons A de silicagel placés en parallèle. Un système de robinets à trois voies permet de les faire servir alternativement ou simultanément.

Ces tampons munis de rodages, sont amovibles et peuvent

être pesés sur une balance au $1/10^{\circ}$ mg avant et après humidification. Pour un temps donné, la différence de masse indique la quantité de glace sublimée dans la colonne verticale.

- l'air part ensuite directement vers la pompe.

Courbe expérimentale

Un tel appareil nous a permis de faire l'étude de la quantité de glace sublimée en fonction de la vitesse du courant d'air et de trouver des résultats qui recoupent convenablement ceux obtenus avec une surface plane.

Il nous a aussi donné la possibilité d'étudier la variation de la quantité de glace évaporée P en fonction de la masse M de mousse congelée qui était exposée, par centimètre carré de section de tube, dans la colonne .

Les résultats de cette étude sont représentés par la courbe 32.

En ordonnées sont indiquées les quantités de glace sublimée exprimées en grammes par heure et par cm^2 de section de la colonne verticale. En abscisses, les masses moyennes de mousse congelée exposée par cm^2 de section de la colonne et prises à la mi-temps de l'expérience considérée. Pour déterminer cette abscisse, il est facile, connaissant la masse de glace introduite et celle évaporée dans les mesures précédentes, de fixer la quantité de mousse qui reste au départ de la nouvelle mesure en question. La pesée des tubes amovibles A indiquant la perte de poids de la glace dans cette mesure fixe la quantité de mousse restante à la fin de celle-ci. La moyenne de ces deux quantités, divisée par la section de la colonne, donne le nombre cherché à la mi-temps.

Lorsque toute la mousse est évaporée, une vérification est faite pour comparer la masse de glace introduite et la masse évaporée. Seule doit rester dans la colonne la très faible partie d'agent moussant.

On peut de suite remarquer le caractère linéaire de la première partie de chaque courbe. Celles-ci, établies pour des vitesses du courant gazeux de 250, 700, 1370 et 2 400 cm/sec. soit, respectivement en Km/h : 9 - 25 - 49,3 et 86,4 , sont de la forme $P = A.M$.

Cela montre que, si, comme l'indiquent les mesures d'un chapitre précédent, pour les premiers centimètres

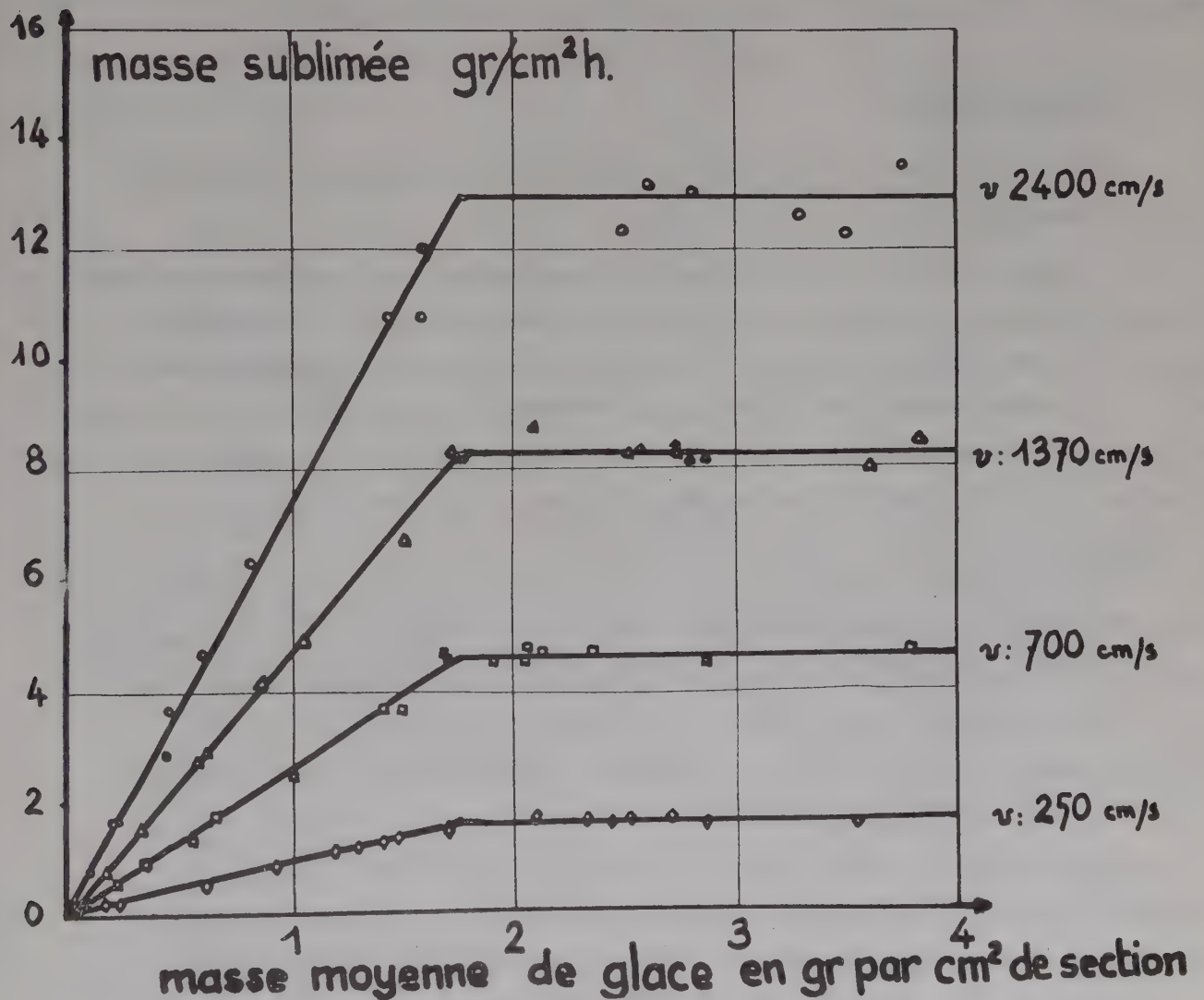


figure 32

carrés l'évaporation se fait très forte puis diminue rapidement pour décroître plus faiblement ensuite, on arrive assez vite à une sublimation régulière directement

proportionnelle à l'aire exposée.

D'autre part, pour une épaisseur fixe de la couche de mousse et, semble-t-il, indépendante de la vitesse, la courbe atteint un palier : l'addition de mousse ne provoque aucune évaporation supplémentaire.

Le fait est commun aux diverses courbes tracées pour des vitesses très différentes et correspond, nous l'avons vérifié, à la saturation en humidité du courant gazeux .

Conclusions

Nous pouvons tirer les conclusions pratiques suivantes de ces mesures :

- il sera inutile de surcharger en mousse un appareil fonctionnant selon ce principe puisque l'évaporation n'augmente plus dès que la masse de glace exposée atteint 2 grammes au cm^2 . Il sera donc indiqué, afin d'éviter toute perte de charge qui serait provoquée par un amoncellement exagéré de mousse, de procéder à une alimentation régulière en cours d'opération.

Ce système très facile à réaliser puisque nous opérons à pression atmosphérique, a encore l'avantage de permettre la fabrication de la mousse pendant le fonctionnement de l'appareil. Sans jamais avoir un stock important de cette matière assez volumineuse, l'ensemble peut donc, sans aucune difficulté, marcher en continu.

- Nous avons, comme pour le chapitre précédent, voulu comparer les performances atteintes par cet appareil avec celles de la machine "Loire" semi-industrielle actuellement en service à Nantes au Centre Hospitalier.

Dans la première phase de la sublimation - où la température est maintenue au-dessous de 0°C - on attend 12 heures pour lyophiliser une masse maximale de 26 Kg d'eau .

Cela fait un rendement de 2 170 grammes à l'heure .

Si nous voulons construire un appareil basé sur le principe de la cryodessiccation en courant gazeux et pouvant, aussi, évaporer 2 170 gr. d'eau à l'heure et si nous choisissons une vitesse du courant d'air de 1 370 cm/sec. - soit environ 50 Km/h - permettant une évaporation de $8,5 \text{ gr/cm}^2$ de section de tube, nous voyons qu'il nous sera nécessaire de disposer d'une section de $\frac{2 \cdot 170}{8,5} = 260 \text{ cm}^2$ soit un débit de $260 \times 1\,370 = 355\,10^3 \text{ cm}^3/\text{sec}$ ou $1\,200 \text{ m}^3/\text{heure}$.

Il ne s'agit là que d'un débit modeste pour une soufflante Roots par exemple et l'installation nécessaire pour souffler de l'air froid à 50 Km/h dans un tube de 18 cm de diamètre chargé d'une couche de 2 gr de mousse congelée par cm^2 semble nettement moins encombrante et onéreuse que les appareils actuellement en service .

Le principe d'une telle méthode paraît pouvoir s'adapter facilement à des problèmes de fabrication en grandes masses de produits alimentaires pour lesquels la lyophilisation a , jusqu'à présent, échoué pour des raisons économiques.

Chapitre VIII

OUVERTURES SUR L'INDUSTRIE

Toutes ces expériences, toutes ces mesures, et ces courbes sont, avant tout, destinées à déterminer si la lyophilisation, procédé coûteux mais modernisé chaque année et objet d'études incessantes pour le rendre petit à petit plus avantageux, n'aurait pas intérêt à être radicalement remplacé par un principe nouveau qui, à l'état brut, sans avoir reçu d'amélioration, envisage cependant déjà, des performances au moins égales à celles de l'évaporation sous vide.

Toutes ces études de laboratoire sont destinées à se concrétiser en appareils devant servir l'industrie, aussi nous avons tenu à ne pas nous confiner au stade expérimental et avons-nous tenté quelques sorties et quelques ouvertures dans ce vaste domaine que constitue l'exploitation commerciale.

Comme nous avons fait à la fin des deux chapitres précédents, nous prendrons pour base de référence, car il en faut obligatoirement une, les performances et les caractéristiques de l'appareil "Loire" du C.R.T.S.

Nous remercions ici tous les ingénieurs, tous les industriels, qui ont bien voulu nous éclairer et nous fournir les renseignements techniques sans lesquels aucun regard sur un horizon aussi vaste n'eût été possible.

Tout de suite, indiquons une voie attirante mais

dangereuse qu'il nous faudra éviter :

Il semblerait élégant de supprimer d'un trait de plume l'inévitable système réfrigérant-desséchant et toute l'installation mécanique qu'il comporte. Pour cela, il suffirait de disposer d'azote liquide qui, par sa détente, produirait un froid intense, capable, sans autre apport d'énergie, de fournir les frigories nécessaires au refroidissement de l'air et à la très basse température des serpentins condenseurs.

Toute séduisante que paraisse cette proposition, elle est inacceptable : ce serait sacrifier, pour obtenir un prix peu élevé de construction et rechercher une simplicité extrême, la marche future d'une telle machine. Nous allons le voir la consommation en azote serait exorbitante et rendrait non rentable ce procédé.

La chaleur latente de vaporisation de l'azote est , à $-195^{\circ}80$ C. (sa température d'ébullition à la pression ordinaire) de 47,74 cal/gr. N'entrevoions que le côté condenseur et cherchons la quantité d'azote liquide qui serait nécessaire pour congeler 2,170 Kg de vapeur d'eau à l'heure.

Si nous fixons à -50° la température intérieure du condenseur nous aurons :

- Nombre de Calories absorbées par Kg d'azote pour s'évaporer : 47,74

- Nombre de Calories (ou millithermies) absorbées par Kg d'azote pour passer de -195 à -50° :

$$(195-50) \times 1 \times 0,24 = 34,80$$

Soit pour 1 Kg d'azote initialement liquide :

$$47,74 + 34,80 = 82,54 \text{ Cal. absorbées.}$$

La densité de l'azote liquide est 0,808 . La vaporisation et l'échauffement d'un litre initial retiendront donc

$$82,54 \times 0,808 = 66 \text{ Calories}$$

La chaleur latente de sublimation de la glace est voisine de 600 Cal/Kg. Cette chaleur doit être retirée de la vapeur pour la solidifier.

- Pour condenser 1 KG de vapeur il faut donc absorber : 600 C.

- Pour porter cette glace vers une température moyenne de -30°C . il faut encore lui prendre : $30 \times 1 \times 0,47 = 14 \text{ Cal.}$

- Cela fait, pour congeler 1 Kg de vapeur un total de
 $600 + 14 = 614 \text{ Calories}$

- Si l'on exprime cela en litres d'azote liquide utilisés nous obtenons : $614 / 66 = 9,3 \text{ litres}$

- Puisque nous avons 2,170 Kg d'eau à capter cela fait donc une consommation horaire de plus de 20 litres d'azote liquide et nous n'avons tenu compte que des condenseurs.

Le problème peut s'envisager de deux façons :

- ou l'on fabrique l'azote liquide et le problème n'est que déplacé et l'on ne peut plus compter sur une simplification du matériel.

- ou l'on se procure l'azote liquide. En utilisant les tarifs dégressifs cela peut s'estimer à une consommation horaire de plus de 27 francs nouveaux.

Si l'on remarque bien que notre calcul n'a pas tenu compte de la dépense d'azote nécessaire pour refroidir le courant gazeux, le coût total horaire semble faire payer très cher les frais d'installation qu'un tel procédé évite.

Pour les dessiccations se pratiquant journellement au C.R.T.S. un calcul sommaire montre que l'amortissement de l'installation de la machine demande 5% du prix de vente du produit fini (soit environ 250 francs nouveaux pour 80 flacons) La dépense d'énergie nécessaire au compresseur (12 CV) et aux pompes (2 de 1 CV) peut être évaluée à 1,50 francs de l'heure pour toute la charge. Le prix de l'azote dépensé surpasserait la somme de l'amortissement et de l'entretien.

D'autre part, malgré sa simplicité, l'appareil utilisant l'azote aurait un prix d'installation qui ne pourrait être négligé. Il en résulte, comme nous l'avons dit plus haut que cette solution, quoique séduisante par sa simplicité, doive être rejetée.

Il est donc vérifié que l'azote est trop onéreux pour remplacer l'électricité. Hors du prix de revient des diverses énergies quelle est donc la donnée physique qui impose une telle conclusion ?

C'est la disproportion entre la chaleur latente de vaporisation de l'azote (47,74 cal/g) et la chaleur de sublimation de la glace (voisine de 600 cal/g). La comparaison de ces deux chiffres entraîne une énorme dépense d'azote pour condenser la vapeur d'eau formée et provoque, lorsque l'on passe aux données pécuniaires, le rejet pur et simple de ce premier projet.

Un autre inconvénient se présente, moins grave mais propre à tout système de dessiccation de l'air par condensation sur des conduits froids :

Supposons que l'air arrive à -2°C . sur la mousse . Etant donnée la forte chaleur de sublimation de la glace et comme nous l'avons vérifié expérimentalement (fig 11) alors que l'air, contrairement au cas présent s'échappait loin d'être saturé, la température du courant gazeux est abaissée à la sortie de la chambre d'évaporation.

Si, déjà refroidi, l'air doit encore passer sur des tubes réfrigérants, le mal ne fera qu'empirer et le gaz risque de revenir sur la glace à une température interdisant toute évaporation. Le remède est simple et consiste à chauffer cet air par quelque système lui fournissant des calories. Il risque bien cependant de nécessiter un apport supplémentaire d'énergie et ne peut être acceptable que si l'on utilise les calories venant de l'extérieur par une calorifugation moins poussée et savamment dosée avant l'arrivée à la chambre

ou si, et nous verrons plus loin le cas, le système général est suffisamment économique pour permettre sans inconvénient cette petite dépense supplémentaire.

Cela nous amène à envisager un procédé de dessiccation qui, au lieu d'accentuer le refroidissement, le contrarie par un léger échauffement. Ce résultat est aisément obtenu en utilisant du gel de silice. L'élévation de température à la sortie de l'élément desséchant est généralement voisine de 3°C. (40) par gramme d'eau retiré de chaque Kg d'air traité.

Nous avons à retirer de 1200 m³ soit 1550 Kg d'air à l'heure 2,170 Kg d'eau. Cela fait une élévation de température de :

$$\frac{2\,170 \times 3}{1\,550} = 4^{\circ}2$$

Elle est du même ordre que le refroidissement dû au passage de l'air sur la glace qui lui prend en une heure : 2,170 x 600 Calories et qui abaisse sa température de

$$\frac{2,170 \times 600}{1\,550 \times 0,24} = 3^{\circ}5$$

Nous constatons que ces deux faibles écarts de température se compensent en partie et permettent d'utiliser un système réfrigérant de peu d'importance.

Le fait que l'on peut recycler l'air initial dans l'ensemble vide jusqu'à obtenir, après le nombre de passages suffisant, la température inférieure à 0°C. nécessaire pour ne pas faire fondre la glace, cette température se maintenant presque constante par la suite, ne peut que confirmer la constatation précédente.

Nous avons pris contact avec des industriels spécialistes qui proposent, pour capter en continu 2,100 Kg d'eau à l'heure avec un débit identique à celui que nous proposons, un appareil composé des organes suivants :

- Deux cylindres en parallèle : l'un utilisé comme élément désséchant durant 8 heures, tandis que l'autre se régénère pendant 4 à 5 heures puis se refroidit. Garnis d'actigel microporeux, ces deux cylindres ont un diamètre de 0,55 m et une hauteur de 2,50 m.

- Un motoventilateur de 2 CV (220 triphasé, 50 périodes)
- Les thermomètres et les contacteurs.

L'appareillage complet a une longueur de 3,20 m , une largeur de 0,80 m et une puissance totale (système de régénération compris) variant entre 10 a 20 Kw. Son prix est voisin de 12 500 francs nouveaux.

Des ce moment quelques considérations s'imposent :

Si le gain d'encombrement est nul, le prix de revient de l'heure de marche est considérablement moindre que celui du procédé utilisant l'azote et est abaissé sensiblement au prix de celui utilisé au C.R.T.S.

Il faut encore noter que si nous avons envisagé ici la partie la plus compliquée et la plus onéreuse de l'installation globale, nous n'avons pas la totalité de l'appareil. Il apparait cependant que la construction de l'ensemble reviendrait à un prix nettement plus faible que celui du Centre Hospitalier. La comparaison des deux sommes : 12 500 f. et 150 000 francs est assez éloquente à ce sujet.

Quoi qu'il en soit, les deux procédés peuvent rivaliser et le nouvel appareil gagne nettement sur la construction sur la diminution des risques à l'utilisation et sur la disparition de l'hypothèque du vide.

Le très faible déséquilibre thermique indiqué plus haut, maintient les écarts de température à une valeur peu élevée et, par là même, diminue considérablement l'importance du système devant assurer la réfrigération de l'air. Il fait arriver, pour le cas présent, à sa limite de validité, la première partie de la remarque suivante de R.Blin (41) :

" Si l'on a affaire à une simple deshydratation, l'emploi de deshydratants est avantageux car les calories de régénération coûtent moins cher que les frigories du condenseur , mais, s'il faut, de toute façon, fournir des frigories pour refroidir l'air, la solution frigorigène est parfois la plus avantageuse, surtout s'il n'y a pas trop d'eau à congeler."

Cet auteur laisse entendre que, si la réfrigération de l'air doit être importante, il est préférable de faire appel à la solution frigorigène. C'est ce que nous avons finalement adopté.

Le premier mode, avec l'azote liquide, réduisait totalement l'installation mécanique mais revenait trop cher pour la consommation horaire. Le second mode conduit à une appréciable économie dans la mise de fond initiale, à un coût de fonctionnement raisonnable mais à un volume qui aurait besoin d'être réduit. La solution frigorigène par procédé mécanique a été étudiée pour nous, par les Etablissements Brissonneau-York à qui nous tenons une fois encore, à exprimer nos remerciements.

Pour parfaitement comprendre comment sont résolus, dans l'industrie, les problèmes du froid et des condenseurs, il faut être familiarisé avec l'emploi du diagramme de Mollier pour l'air humide ou l'un des diagrammes équivalents.

Nous indiquons très succinctement son principe :

Ce diagramme de Mollier représente les variations de l'enthalpie $i = U + PV$ d'un mélange composé de 1 Kg d'air sec et de x Kg de vapeur d'eau , en fonction de x ou humidité spécifique de l'air.

On démontre, en utilisant la chaleur de vaporisation de l'eau et les chaleurs spécifiques des composants du mélange que i peut s'exprimer par :

$$i = 0,24 t + x (0,46 t + 597) \text{ Kcal/Kg d'air sec}$$

Cette expression suppose nulle l'enthalpie de l'eau à 0°C; et exprime la température t en degrés Celsius.

Par convention l'axe des i est choisi vertical et celui des x incliné avec un angle supérieur à 90° .

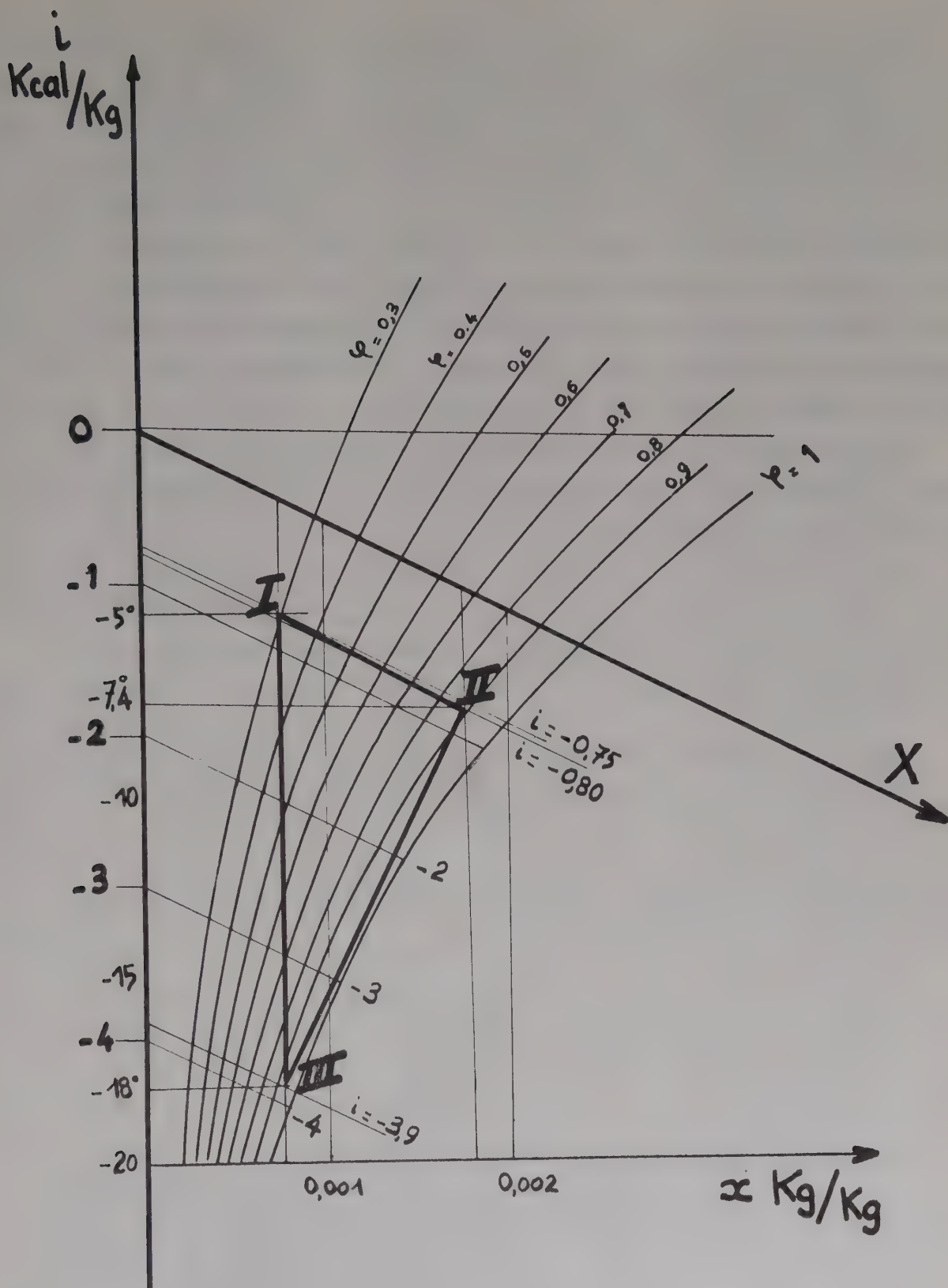
La relation entre les x et les i ayant plus de deux degrés de liberté, on devra constamment tracer sur ce diagramme, des courbes pour lesquelles le troisième degré de liberté sera maintenu constant.

Sur la figure 33 sont représentées des isothermes, obtenues, dans la relation précédente, pour $t = \text{Cste}$. Elles forment un faisceau très légèrement divergent et l'inclinaison de l'axe des x est choisie pour que l'isotherme $t = 0^\circ \text{ C}$ rencontre perpendiculairement l'axe des ordonnées à l'origine du diagramme.

On a également tracé des courbes d'égal degré hygrométrique. D'abord la courbe de saturation pour $\varphi = 1$. Au-dessus d'elle la région de l'air humide et au-dessous, la zone des brouillards d'eau ou de glace. Ensuite, des courbes pour des degrés hygrométriques moindres : $\varphi = 0,9 \quad 0,8 \quad 0,7 \dots$ Ces dernières courbes ressemblent à celle de saturation mais elles sont situées dans la région de l'air humide.

Enfin on peut remarquer des "courbes de température du thermomètre humide". Elles indiquent la température qu'atteint un corps mouillé entouré par un courant d'air. Cette température, inférieure à celle de l'air non saturé, l'atteint sur la courbe de saturation. Ce sont des droites dont l'inclinaison θ_h est légèrement inférieure à celle des i et qui s'en écartent d'autant plus que l'on s'éloigne de 0° . Ce sont ces droites que suit le système lorsque l'air se refroidit ou s'échauffe en s'humidifiant au contact d'une surface humide.

Quand l'air se réchauffe à humidité constante, son point représentatif suit une verticale parallèle à l'axe des i . Lorsque l'air se refroidit, son état descend de la même façon à x constant et voit son degré hygrométrique augmenter. Cela se poursuit jusqu'au contact avec la courbe de saturation où se trouve le point de rosée.



Si la température de la surface froide au contact de laquelle l'air se refroidit est supérieure à celle du point de rosée la droite parcourue par le point figuratif de l'état du mélange joint simplement l'état initial de l'air à celui de la surface froide. Mais si cette dernière surface est à une température inférieure à celle du point de rosée, le point représentatif de l'état de l'air suit une courbe assez complexe qui ne quitte pas le domaine de l'air humide. Il se produit donc alors une condensation d'eau puisque l'air ne peut pas être sursaturé.

Généralement et dans la mesure du possible, on s'accorde à représenter cette courbe par une droite joignant les états initial et final.

Le diagramme $i-x$ de Mollier (42) comporte encore un grand nombre d'autres courbes. Nous n'avons pas à nous en servir dans l'application qui va suivre, aussi n'avons-nous pas cherché à les exposer.

A l'aide d'un tel diagramme, il est possible de résoudre les problèmes d'évaporation, de condensation, d'échauffement ou de refroidissement d'air humide. Nous pouvons ainsi étudier le cas qui nous préoccupe et voir comment il est possible de sublimer dans un courant d'air froid 2,170 Kg de glace à l'heure.

Comme il s'agit de montage semi-industriel, nous ne pousserons pas l'air jusqu'à la saturation mais nous nous contenterons, à la sortie de la chambre de sublimation, d'un φ fixé à 0,9 .

Soit au départ, un air moyennement sec à $\varphi = 0,3$ et à $t = -5^{\circ}\text{C}$. (état I). Faisons-le traverser nos paillettes de glace. Au contact d'une substance composée d'eau, il se charge d'humidité et suit la droite représentative de la température du thermomètre humide passant par l'état I , droite ayant une pente de -85 et ressemblant beaucoup aux

isenthalpes proches. Il se déplace sur cette droite jusqu'au point II où il rencontre la courbe de degré hygrométrique

$\varphi = 0,9$ que nous avons choisie comme humidité maximale.

L'air, ainsi humecté, sorti de la chambre de sublimation va se dessécher au contact d'une batterie froide . Il en ressort à -18°C . au point III après y avoir laissé une grosse partie de la vapeur d'eau qu'il contenait. Pour parvenir en III, la théorie indique que, pour des échanges lents réversibles et complets, il faut joindre II au point représentatif de la batterie froide à -25°C sur la courbe de saturation. En fait, les transformations sont beaucoup plus rapides et complexes et tout l'air ne touche pas les ailettes du condenseur. L'expérience montre que le courant gazeux sort à -18° et à $\varphi = 0,93$ et l'on représente ce "dessèchement" par la droite II - III .

Il ne reste plus ensuite qu'à échauffer l'air à x constant pour voir le degré hygrométrique diminuer rapidement et revenir au point de départ I à -5° et $\varphi = 0,3$. Le point figuratif se déplace alors sur une droite parallèle à l'axe des i et l'enthalpie passe de $-3,9$ à $-0,75$ Kcal par Kg d'air sec.

Ce cycle représenté, il est possible de déterminer les calories qu'il est nécessaire de mettre en jeu et d'en déduire les caractéristiques de l'installation frigorifique.

- du point I au point II on a :

$$x_2 - x_1 = 0,0018 - 0,00075 = 0,00105 \quad \text{d'où}$$

Poids d'air à mettre en mouvement :

$$\frac{2,170}{0,00105} = 2\,060 \text{ Kg/h soit } 1\,650 \text{ m}^3 \text{ environ .}$$

Pour déterminer la puissance frigorifique de l'installation :

- du point II au point III on a :

$$i_3 - i_2 = 3,9 - 0,8 = 3,1$$

Puissance frigorifique :

$$3,1 \times 2\,060 = 6\,400 \text{ fg/h.}$$

Pertes par parois et incalculables : 1 000

Puissance frigorifique totale nécessaire : 7 400 frigories/h

Puissance calorifique pour le réchauffage de l'air :

- du point III au point I on a :

$$i_1 - i_3 = 3,9 - 0,75 = 3,15$$

Puissance de la batterie de réchauffage :

$$3,15 \times 2\,060 = 6\,500 \text{ Cal / heure}$$

Pour réaliser un tel travail les Etablissements
Brissonneau-York nous proposent :

Le refroidissement de l'air par passage sur une batterie
en tubes à ailettes dans laquelle s'évaporerait du R.12 .

Le réchauffage de l'air par passage sur une batterie
en tubes à ailettes dans laquelle se condenserait une partie
du R.12 .

L'installation frigorifique comporterait donc :
un compresseur de R.12 dont les caractéristiques seront
données plus loin et
deux condenseurs de R.12 montés en parallèle.

L'un de ces condenseurs serait le réchauffeur d'air
dont il a été question ci-dessus et l'autre serait un conden-
seur à circulation d'eau.

La régulation automatique s'opérerait comme suit :
- a) la température de l'air à la sortie de la batterie froide
serait maintenue sensiblement constante à la valeur désirée
au moyen d'une vanne à pression constante installée sur l'as-
piration du compresseur et maintenant la pression d'évapora-
tion du R.12 dans la batterie froide à une valeur prédéterminée.
- b) la température de l'air à la sortie de la batterie
chaude (point I du schéma) serait maintenue sensiblement

constante au moyen d'une vanne thermostatique réglant le débit d'eau sur le condenseur à circulation d'eau. Le bulbe de cette vanne détecterait la température de l'air en I et provoquerait la modulation du débit d'eau sur le condenseur. Si la température de l'air sortant de la batterie chaude avait tendance à s'élever au-dessus de la température désirée la vanne thermostatique provoquerait une augmentation du débit d'eau froide dans le condenseur, ce qui entraînerait un abaissement de la température de condensation du système et par conséquent l'abaissement de la température de l'air réchauffé. Le fonctionnement serait inverse lorsque la température de l'air à la sortie de la batterie aurait tendance à s'abaisser.

L'installation comprendrait :

- 1 compresseur de R.12 à 6 cylindres en W de la série B.Y.67 possédant les caractéristiques de fonctionnement suivantes :

puissance frigorifique	7 400 fg/h
température d'évaporation du R.12	-29°C
température d'aspiration	-31°C
température de condensation	+30°C
vitesse de rotation	1 150 t/mn
puissance absorbée à ce régime	7,5 ch.

- 1 moteur électrique d'entraînement du compresseur ci-dessus cité, du type en court-circuit, prévu pour courant triphasé 50 Hz - 380 V.

puissance du moteur électrique	10 ch
vitesse de rotation	1 450 t/mn

Il serait fourni avec un contacteur-disjoncteur.

- 1 transmission par courroies trapézoïdales .
- 1 séparateur d'huile avec dispositif automatique de retour d'huile au carter du compresseur.
- 1 jeu d'accessoires et d'outillage spéciaux au compresseur
- 1 jeu de pièces de rechange usuelles pour le compresseur.
- 1 condenseur de R.12 au type multitubulaire à circulation d'eau débit nécessaire 1 m³/h environ

- 1 condenseur de R.12 pour le chauffage de l'air .
Ce condenseur serait constitué d'une batterie en tubes à ailettes (tubes en cuivre , ailettes en aluminium à l'écartement de 4 mm)
- 1 bouteille accumulatrice de R.12, d'une capacité de 20 litres environ , pour recueillir le R.12 liquéfié à la sortie des condenseurs.
- 1 filtre deshydrateur monté sur la ligne liquide .
- 1 échangeur-surchauffeur destiné à sous-refroidir le liquide et à surchauffer les vapeurs aspirées, afin d'obtenir un rendement optimum pour l'installation.
- 1 batterie de refroidissement de l'air, en tubes à ailettes. (tubes en cuivre, ailettes en aluminium à l'écartement de 8mm)
- 1 poste de détente de R.12 pour l'alimentation de la batterie froide et constitué par un détendeur thermostatique avec robinetterie d'arrêt et détendeur de secours à commande manuelle, monté en by-pass .
- 1 vanne à pression constante, montée sur l'aspiration du compresseur .
- la tuyauterie et la robinetterie de R.12 pour la constitution du circuit frigorifique.
- la première charge de R.12 et la première charge d'huile pour le compresseur.
- 1 groupe moto-ventilateur, type centrifuge, de 2 ch., pour la circulation de l'air en circuit fermé. Il serait livré avec un contacteur-disjoncteur.
- 1 vanne thermostatique à eau, à monter sur l'arrivée d'eau au condenseur multitubulaire, avec robinetterie de sectionnement.
- le transport de ce matériel à la Faculté des Sciences de Nantes.
- le montage et la mise en route par un chef-monteur qualifié.

Le tout évalué à 30 000 Fr , les 20% de TVA perçus.

Seuls ne sont pas compris :

- les amenées et évacuations d'eau pour la condensation
- les installations électriques et l'aménagement du caisson isotherme où seraient installés les appareils ,
- le système de fabrication et de stockage de la mousse.

L'ensemble proposé ci-dessus a une marche discontinue.

La marche continue serait assurée par l'adjonction d'un autre

évaporateur de R 12 - refroidisseur d ' air
monté en parallèle avec le premier et qu'il suffirait de
mettre en service quand ce premier est saturé . L'un
redeviendrait prêt à l'emploi pendant que l'autre serait en
service.

Nous avons ici un projet concret d'une installation
utilisant notre procédé et revenant à un prix nettement
plus faible que celui qui nous sert d'étalon.

D'autre part, la possibilité d'envisager une marche
continue est un avantage appréciable si l'on sait que l'appa-
reillage sous vide rencontre de grosses difficultés à ce
sujet. Il existe aujourd'hui d'énormes installations avec
tunnel et sas, permettant une telle opération mais à un
prix excessivement élevé.

Il est bien évident que le fait de travailler à la
pression atmosphérique supprime ce genre de difficulté et
permet l'approvisionnement en matière à sublimer en continu
par un procédé très classique .

C O N C L U S I O N

Ce travail nous a conduit à voir successivement :

- ce qui avait été fait en la matière par les autres chercheurs
- les conditions optimales d'inclinaison afin de permettre une étude expérimentale avec le moins d'erreur relative possible ,
- l'influence de la vitesse et de la température ,
- le processus de la sublimation de la surface léchée tant sur la longueur que sur la largeur ,
- une étude aboutissant à la détermination des conditions optimales de la sublimation de la glace divisée ,
- quelques réalisations utilisant le vide ,
- des propositions concrètes pour atteindre un résultat semblable à moindre frais et sans les difficultés inhérentes à l'emploi du vide et à sa conservation.

Il nous a permis de prospecter, dans une nouvelle voie, les solutions pouvant améliorer les modalités d'emploi de la lyophilisation .

Bien sûr, il ne s'agit là que d'une compétition n'ayant qu'un petit aspect concurrentiel : notre travail s'applique surtout aux jus et aux substances liquides pouvant être congelées sous forme de mousse . On trouve cependant dans cette catégorie, les très intéressants domaines des jus d'agrumes, de tomates et autres légumes qui composent une importante fraction des substances couramment lyophilisées.

Nous remercions encore une fois les personnes
et les entreprises qui nous ont permis de mener à bien
ce travail. Nous souhaitons de tout coeur, qu'il sera
repris par d'autres, afin d'en voir un jour, la réalisation
et les applications, fonctionner sur grande échelle
à la satisfaction de tous .

:--:--:--:--:--:--:--:--:~

CARACTERISTIQUES PHYSIQUES DE LA GLACE

Composition (3)

	hydrol	dihydrol	trihydrol
glace	0 %	41 %	59 %
eau à 0° C.	19 %	58 %	23 %

Généralités

- diamètre de la molécule H_2O 2,78 Å (3)
- une molécule-gramme d'eau à l'état de glace occupe un volume de 19,6 cm³ (3)
- chaleur spécifique de la glace (1)
 - 250°C. 0,0361 cal deg⁻¹gr⁻¹
 - 200 0,156
 - 150 0,246
 - 100 0,332
 - 40 0,435
 - 0 0,492
- densité (2)

glace I	glace II	glace III	glace V	glace VI
0,9	1,08	1,03	1,09	1,13
- coefficient de dilatation linéaire (2)

de -27 à 0°C. 51 10⁻⁶
- coefficient de dilatation cubique volumétrique (2)

de -20 à -1 $a_v = 112,5 \cdot 10^{-6}$
- coefficient de conductibilité thermique (2) et (3)

nombre de petites calories qui traversent par seconde, un centimètre-carré d'une lame ayant un centimètre d'épaisseur et dont les deux faces sont à un degré Celsius d'écart :

glace	de 0,005 à 0,0022 (autant que la craie, un peu plus que le verre)
eau à 0°C	0,00139
air	0,0000568

Changements d'états (2)

- Températures de fusion

Pression en atmosphères	Glace I	Glace III	Glace V	Glace VI
1	0° C			
590	- 5			
2045	-22	-22		
2820		-18,5		
3040			-20	
3420		-17	-17	
4640				- 15
5110				- 10
5270			- 5	
5620				- 5
6160			0	0
10000				+ 30
45000				+190°C

- Chaleur latente de fusion (1)

glace d'eau pure à 0°C : 79,71 cal/gr
 glace d'eau de mer à - 8,7 °C : 54,0

- Chaleur latente de vaporisation de l'eau (1)

0° : 595,9 cal/gr	60° : 563,2	110° : 532,9
10 : 590,4	80 : 551,7	120 : 525
20 : 584,9	90 : 545,8	140 : 511
30 : 579,5		160 : 495,6
40 : 574	<u>100</u> : 539,55	180 : 478,6

- Tension de vapeur de la glace (1) voir fig. 10 et 22

	mm de Hg				
-98°C	0,000 015	-25°C	0,476	-5°C	3,013
-90	0,000 070	-20	0,776	-4	3,280
-80	0,000 40	-15	1,241	-3	3,568
-70	0,001 94	-10	1,950	-2	3,880
-60	0,008 08	- 9	2,131	-1,5	4,045
-50	0,029 55	- 8	2,326	-1	4,217
-40	0,096 6	- 7	2,537	-0,5	4,445
-30	0,285 9	- 6	2,765	0	4,579

- Tension de vapeur de l'eau (1)

	mm de Hg				
-15°C	1,436	+20°C	17,535	+95°C	633,90
-10	2,149	30	31,824		
- 5	3,163	40	55,324	100	760,00
0	4,579	50	92,51	105	906,07
+ 5	6,543	60	149,38	150	3570,48
+10	9,209	70	233,7	200	11659,16
+15	12,788	80	355,1	300	64432,80
		90	525,76	370	157 692,40

(1) Handbook of Chemistry and Physics published by Chemical Rubber Publishing Co 2310 Superior Ave.N.E. Cleveland Ohio

(2) Techniques de l'Ingénieur

(3) Nouveau Traité de Chimie Minérale P.Pascal Ed. Masson

BIBLIOGRAPHIE

- (1) Martin C. 1896 A simple and rapid method of dessicating serum and keeping it sterile during the process
J.Pathol.Bacteriol 3 507-509
- Harris R.J.C. , Greaves R.I.N. Biological Applications of Freezing and Drying Academic Press inc.
Publ. 1954
- (2) Ede A.J. (U. Cambridge) Physics of low-temperature drying process J.Soc.Chem.Industr. G.B. (1949) , 68, n° 11 , 330-2
- L. Dunoyer Sur le séchage par évaporation dans le vide
C.R. Acad. Sci. Fr. (1950) 232 n°11 1080-2
- Flosdorf E.W. Freeze-drying (bibliographie importante)
N.Y. Reinhold Publ.Corp. (1949) 23,5 x 15,5
VII 280 p.
- Dunoyer L. Bases théoriques de la dessiccation dans le vide
Vide Fr. (1951), 6, n°34-35 , 1025-40
Vide Fr. (1951), 6, n° 36 , 1077-90
- Beckett L.G. Freeze-drying , vacuum sublimation
J.Sci.Instrum.Suppl. G.B. (1951) n°1 66-8
- Dunoyer J-M. La lyophilisation et ses applications industrielles. Vide Fr. (1955) 10 n°57 42-9
- Day G.A. (C.S.I.R.O.) Radiophys.Lab. Sydney Australia
Sublimation nuclei Proc.phys.Soc. G.B.
(1958) 72 n°2 296-9
- Miura A. Role of solid nuclei in sublimation. Sci.Rep.
Tohoku Univ. Ser V , Japon (1959),11,n°3 162-77
- (3) Langmuir I. Phys. Rev. 2 , 329, (1913)
- Verhoek F.H., Marshall A.L. J.Am.Chem.Soc., 61,2737 (1939)
- (4) Dunoyer L. et J-M . Fonctionnement des condenseurs de vapeur d'eau dans les appareils de dessiccation dans le vide Le Vide N° 60 1956

- (5) Fick A. Etude de la diffusion Poggendorffs Ann.
94 (1855) 59-86
- (6) Dalton Experimental essays of the constitution of mixed
gases, on the force of steam of vapor from water
and other liquids in different temperatures ,
both in a torricellian vacuum and in air ; on
evaporation and on the extension of gases by heat.
Mem. Manchester Lit. and Phil.Soc. 5 535-602 (1798)
- (. 7) Fitzgerald Evaporation
Amer.Soc.Civ.Engin.Trans. 15,581-646
- (8) Carpenter Section of meteorology and irrigation engineering
Colorado Agr.Exp.Stat.Ann.Rpt. 4 29-34
Appendix to the report of the meteorologist and
irrigation engineer 25-97 1891
- (9) Stelling Ueber die Abhängigkeit des Verdunstung des Wassers
von seiner Temperatur und von der Feuchtigkeit und
Bewegung des Luft 42p. St. Petersburg
- (10) Meyer Computing run-off from rainfall and other physical
data Amer.Soc.Civ.Engin.Trans. 79 ; 1056-1224 (1915)
- (11) Rohwer Evaporation from free water surfaces
U.S. Depart. of Agr. in cooperation with Col. Agr.
Exper. st. Techn. Bull. n°271
- (12) Schmidt Strahlung und Verdunstung in freien Wasserflächen
(1931) ein Beitrag zum Wärmehaushalt des Weltmeers
und zum Wasserhaushalt der Erde . Annalen der
Hydrographie und Maritimen Meteorologie
vol. 43 (1915), pp 111-124 , 169-178
- (13) Angström Application of Heat Radiation Measurements to the
Problem of the Evaporation from lakes and the heat
convection at their surface.
Geografiska Annaler vol 2 (1920) p.237
- (14) Cummings et Richardson Evaporation from lakes
Phys.Rev. (2) 30 , 527-534 (1927)

- (15) Thornthwaite et Holzman The determination of evaporation from land and water surfaces.
Monthly Weather Review vol.67, 1939, pp 4-11
- (16) Prandtl L. Physik. Zeitschr. 29 , 487 (1928)
- (17) Reynolds O. On the extent and action of the heating surface of stram boilers.
Proc.Lit. and Phil.Soc. of Manch. 14 (1874)
- (18) Nestorenko (en russe) Echanges de chaleur et de masse lors de l'évaporation superficielle d'un liquide.
Zh. tekhn. Fiz. SSSR (1954), 24, n°4 729-41
- (19) Yih A comparative study of momentum transfer, heat transfer and vapor transfer, free and forced convection. Report 1, 2 et 3 Dept. of Civil Engineering, Colorado A and M College(1950 et 51)
- (20) Albertson La mécanique de l'évaporation
Houille Blanche (1955) 10, n°5, 704-717
(1956) 11, n°1, 36-52
Sur l'extension de l'analogie de Reynolds à l'évaporation.
C-R Acad.Sci.Fr. (1954) 239 , n°6, 474-6
- (21) Maiser et Sherwood Evaporation of liquids into turbulent gas streams.
Chem. Engng. Progress Mars-Avril 1950
- (22) Robin M. L'évaporation forcée
Chaleur et Industrie (1954) n°120
- (23) Hickok Evaporation from a free water surface
Univ. of Calif. Thesis (1939)
- (24) Taylor Some recent developments in the study of turbulence. Proc. 5th. Intern. Congr. Appl. Mech. Cambridge Mass p.294 (1938)
- (25) Karman The analogy between fluid friction and heat transfer. Trans. of the ASME vol.61 pp 705-10 (1939)

- (26) Hoffman Über die Gesetzmässigkeit der Wärme und der Stoffübertragung auf Grund des Strömungsvorgangs im Rohr. Forschung a. d. Geb. d. Ing. vol. 11 pp. 159-169 1940.
- (27) Mattioli Wärmeübertragung in glatten und rauhen Rohren. Forschung auf dem Gebiete des Ingenieurwesens vol. 11 pp. 148-158 1940
- (28) Kraussold Die Wärmeübertragung an Flüssigkeiten in Rohren bei turbulenter Strömung. Forschung auf dem Gebiete des Ingenieurwesens vol. 4 pp 3 - 44 1933.
- (29) Dittus et Boelter Univ. of Calif. Publ. in Eng. 2 p. 443 1930
- (30) Sutton Wind structure and evaporation in a turbulent atmosphere. Proceeding of the Royal Society of London series A vol 40 pp 701-722 (1934)
- (31) Sherwood et Trass Echanges massiques par sublimation à travers des couches limites compressibles sur une surface plane.
J. Heat Transfer U.S.A. 1960 82 n°4 313-23
- (32) Sogin H.H. Sublimation à partir de disques dans des écoulements d'air normaux à leur surface . Trans. of the A.S.M.E. 1958 80 n°1 61-69
- (33) Kaiser L. Thèse Paris 1959
C.R. Acad. Sc.;. Franc. 1959 , 248, 3001
- (34) Lewis W.K. et Whitman W.G. Ind. Eng. Chem. 1924 , 16 , 1 , 215
- (35) Butler R.M. et Plewes A.C. Evaporation of solids into laminar air streams.
Chem. Engng. Progr. Symp. Ser. USA 1954
50 n°10 , 121-127
- (36) Strickland-Constable et Bruce The mechanism of drying of solids. Trans. Instn. chem. Engrs. G.B. 1954 32, n°3 192,8 fig. tabl.

- (36) Kerwick, Kearsey, Strickland-Constable, Bruce
Freeze Drying - Some considérations relating
to the design of freeze drying plant.
Inst. Refrig. Proc. G - B
(1953-1954) , 50 , 65-68 , 81-89

Kramers A. , Stemerding S. The sublimation of ice in
vacuum. Appl. Sci. Res. B. Netherl.
(1951) , 3 , n°1 , 73-82 .

- (37) Winkelmann A. Wied. Ann. 22 , 1 , 152 , (1884)

- (38) Hickman K.C.D. , Torpey W.A. Evaporation of resting
water Industr. Engng. Chem. USA
(1954) , 46 , n°7 , pp 1446-1462 .

- (39) Colonel Henaff La Dessication des Produits Biologiques
Revue Générale du Froid
Avril 1952 pp. 347-364

- (40) Notice " L'Activateur-Déssécheur dynamique Actigel-Saint
-Gobain " Avril 1948

- (41) Blin R. L'air sec agent de séchage
4^{ème} Congr. Internat. du Chauff. Industriel
Paris Ed. Chaleur et Industrie
(1954) n° 221

- (42) Mollier R. Un nouveau diagramme pour les mélanges d'air
et de vapeur. Zeitschrift des Vereins
deutscher Ingenieure (Düsseldorf)
(1923) pp. 869-872

Mollier R. Le nouveau diagramme i-x pour les mélanges
d'air et de vapeur d'eau.
Z.V.D.I. (1929) pp. 1009-1013

Deuxième Thèse

Propositions données par la Faculté :

METHODES D'ETABLISSEMENT ET D'EXPLOITATION
DES DIAGRAMMES i-X de MOLLIER

VU :

Le Directeur de la Thèse

Président du Jury :

J.M. DUNOYER

VU et APPROUVE

Nantes, le 4 Août 1964

Le Doyen de la Faculté des Sciences :

G. BRILLOUET

VU et PERMIS d'IMPRIMER

Nantes, le 10 Août 1964

Le Recteur de l'Académie de Nantes :

M. SCHMITT



ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DE MECANIQUE DE NANTES